

東京大学大学院新領域創成科学研究科  
環境学研究系 自然環境学専攻  
地球環境モデリング分野

2009 年度

修士論文

化学輸送モデルを用いた乾季のタイにおける

対流圏オゾンと CO 濃度変動に関する研究

A study on tropospheric ozone and carbon monoxide variations  
in the dry season over Thailand using a Chemical Transport Model

2010 年 2 月 26 日 提出

2010 年 3 月 修了

指導教員 高橋正明 教授

086634 笛田将矢

# 目次

<b>1</b>	<b>はじめに</b> .....	<b>3</b>
1.1	対流圏オゾン.....	3
1.2	対流圏オゾンの化学的生成過程.....	6
1.3	対流圏オゾン前駆気体.....	6
1.3.1	CO.....	6
1.3.2	NO <sub>x</sub> .....	8
1.4	アジア域における大気汚染.....	9
1.5	東南アジア域における対流圏オゾン、COの濃度変動.....	9
1.6	本研究の目的.....	13
<b>2</b>	<b>手法</b> .....	<b>14</b>
2.1	モデル.....	14
2.2	モデル設定.....	14
2.2.1	計算領域・解像度.....	14
2.2.2	計算期間.....	15
2.2.3	初期値・境界値.....	15
2.2.4	ナッジング.....	18
2.2.5	化学反応系.....	18
2.2.6	地表エミッション.....	18
2.2.7	物理過程.....	19
2.2.8	モデル設定まとめ.....	19
2.3	観測データ.....	20
2.3.1	地表観測データ.....	20
2.3.2	オゾンゾンデデータ.....	20
2.3.3	衛星観測データ.....	21
<b>3</b>	<b>モデル計算結果と観測との比較</b> .....	<b>22</b>
3.1	地表観測との比較.....	22
3.2	オゾンゾンデとの比較.....	24
3.3	衛星観測との比較.....	25
<b>4</b>	<b>濃度変動の解析</b> .....	<b>27</b>
4.1	オゾン・CO濃度変動.....	27
4.2	収支解析.....	28
4.3	CO輸送の特徴.....	30

5	エミッション感度実験 .....	34
5.1	タイに対するエミッション寄与率 .....	34
6	まとめと今後の課題 .....	39
6.1	まとめ .....	39
6.2	今後の課題 .....	40
	謝辞 .....	41
	参考文献 .....	43
	付録 A ナッジングの有用性 .....	46
	付録 B エミッション感度実験とタグ付トレーサー実験との比較 .....	47

# 1 はじめに

## 1.1 対流圏オゾン

オゾン (O<sub>3</sub>) はおよそ 90%が成層圏に存在し、対流圏に存在するのは残りの 10%ほどにすぎない。しかし、その 10%ほどの対流圏オゾンは地球の気候及び、生態環境に大きな影響を及ぼす非常に重要な気体物質である。対流圏オゾンの重要性を示す特徴として主に以下の 3 点が挙げられる。

第一に、対流圏オゾンは温室効果気体としての特徴を持つ。オゾンは CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O とは異なった波長 9.6 μm 付近に吸収帯があり、地球からの赤外放射を効率良く吸収しやすい。図 1.1 は IPCC 第 4 次報告書 (IPCC-AR4) より引用した 1750 年から 2005 年にかけての気候の放射強制力を示したものである。放射強制力要素毎の 2005 年の放射強制力と 1750 年の放射強制力の差を取ることで、人間活動による放射強制力を示している。対流圏オゾンの放射強制力は正を示しており、温暖化の方向に働くことがわかる。現在、全球での二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) 濃度が 380ppm 程度、(CH<sub>4</sub>) 濃度が 1800ppb 程度 (IPCC-AR4,2007) であるのに対して、対流圏オゾンの濃度は 20~100ppb 程度であり、CO<sub>2</sub> の 1/1900~1/3800、CH<sub>4</sub> の 1/90~1/18 と顕著に低濃度であるにもかかわらず、放射強制力は北半球においては CO<sub>2</sub> の 1/3 程度、CH<sub>4</sub> と同程度かそれ以上の放射強制力を示しているため、低濃度でも強い温暖化効果を持っている。

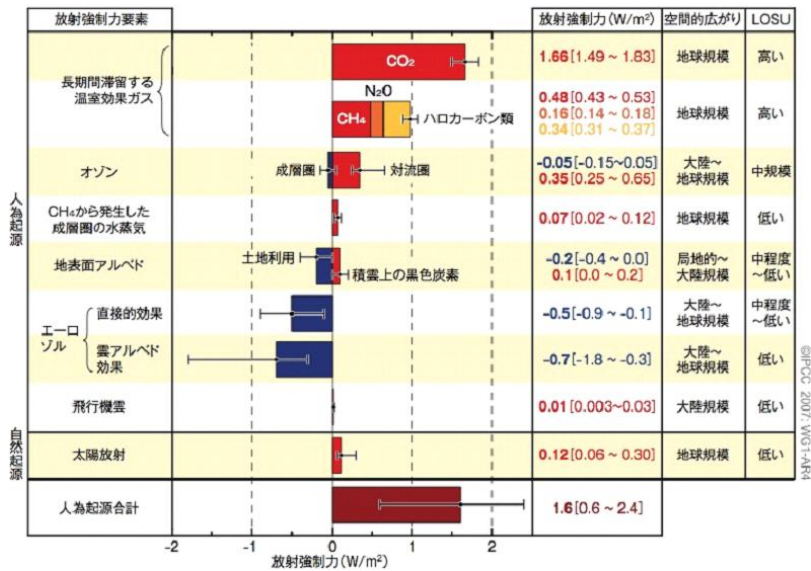


図 1.1 各放射強制力要素による放射強制力。世界平均した推定値及び推定幅。2005 年と 1750 年との差を示している。(IPCC-AR4,2007)

第二に、対流圏オゾンは強い酸化性を持つ汚染気体である。日本において 1970 年代に関東都市域で光化学スモッグが頻発したが、その原因物質である光化学オキシダントの主要成分がオゾンである。この強い酸化性により地表付近において、120ppb ほどの高濃度に達すると、人体に対し、呼吸器系及び粘膜に刺激を及ぼす。さらに高濃度に達すると、呼吸困難や意識障害を引き起こすなどの影響を与える。また、植物に対しても、活性酸素をつくり発育を抑制するなどの悪影響を及ぼす。Lesser et al.(1990)、Skarby et al.(1993)、Kobayashi et al.(1995)は、日中平均オゾン濃度の増加に伴って作物の減収率が上昇することを示している。

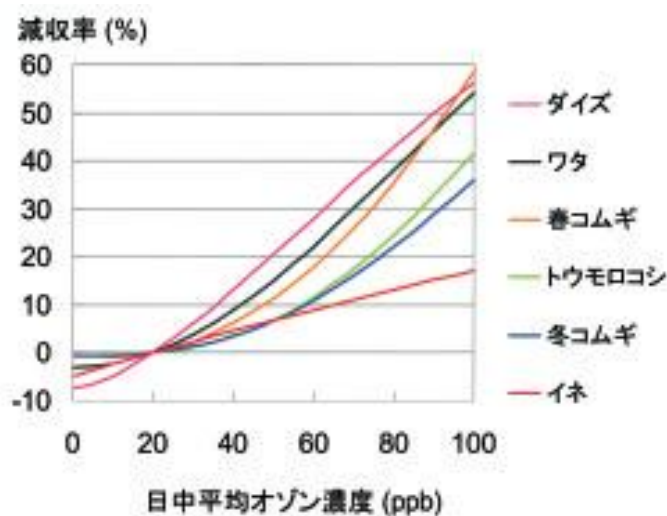
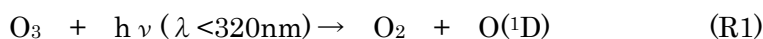


図 1.2 オゾン濃度と農作物減収率との関係 (Kobayashi et al., 1995)

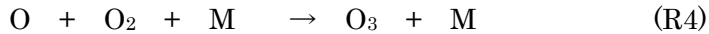
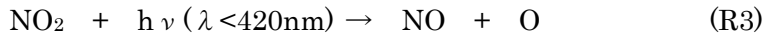
第三に、オゾンは水酸化ラジカル (OH) の主要な生成源としての役割を持つ。オゾンから OH が生成する反応系は (R1)、(R2) であり、オゾンが光解離することで OH が発生する。



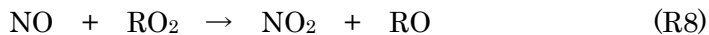
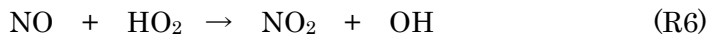
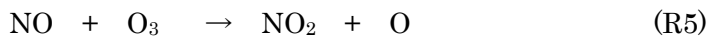
この OH はオゾンよりもさらに強い酸化性によって対流圏中の一酸化炭素 (CO) や CH<sub>4</sub>、その他の炭化水素、窒素酸化物を消失させる。OH と CO、CH<sub>4</sub> などとの反応によって HO<sub>2</sub>、CH<sub>3</sub>O<sub>2</sub> といったラジカルが生成されるが、それらが一酸化窒素 (NO) と反応することによって再びオゾンが生成される。このように、オゾンや OH、HO<sub>2</sub> ラジカル、CO、CH<sub>4</sub>、窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>: 一酸化窒素と二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) との総和) は対流圏中において互いに影響を及ぼしあっている。これらの反応系については次節で詳細に述べる。

## 1.2 対流圏オゾンの化学的生成過程

太陽紫外線が存在する日中、NO<sub>2</sub>の光解離によって生成された酸素原子(O)が酸素分子(O<sub>2</sub>)、及び第三体(M : N<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>などの気体分子)と反応することによって生成する。

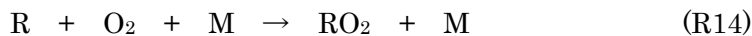
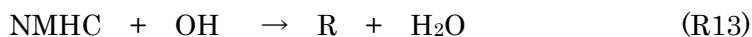
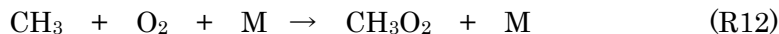
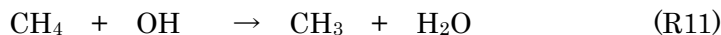
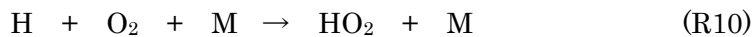
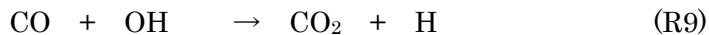


(R3)の反応物であるNO<sub>2</sub>は以下の(R5)～(R8)によってNOが酸化されることによって生成される。



※Rは炭化水素から生成する有機ラジカルを示す

(R5)ではO<sub>3</sub>が消費されてしまうため、正味ではO<sub>3</sub>生成に働かない。(R6)～(R8)の反応物であるHO<sub>2</sub>、CH<sub>3</sub>OH<sub>2</sub>、RO<sub>2</sub>はOHラジカルによるCO、CH<sub>4</sub>、非メタン炭化水素(Non Methane Hydro Carbon : NMHC)の酸化を介して生成される。



(R9)、(R10)はCOの酸化からHO<sub>2</sub>の生成を、(R11)、(R12)はCH<sub>4</sub>の酸化からCH<sub>3</sub>O<sub>2</sub>の生成を、(R13)、(R14)はNMHCの酸化からRO<sub>2</sub>の生成にかけての反応を示している。以上の反応で示されるように、対流圏オゾンが正味で生成となるためには、CO、炭化水素、NO<sub>x</sub>が必要となることから、これらの物質は総称して対流圏オゾン前駆物質と呼ばれる。(R6)、(R7)、(R8)の3つの反応はそれぞれ約70、20、10%の割合で起こる(Lelieveld and Dentener, 2000)ため、COがCH<sub>4</sub>、NMHCよりも強く正味のオゾン生成に寄与している。

### 1.3 対流圏オゾン前駆気体

前節での反応過程で示したように、CO、NO<sub>x</sub>は対流圏オゾンの重要な生成源物質である。本節ではこのCO及びNO<sub>x</sub>の詳細について述べる。

#### 1.3.1 CO

COは汚染気体である対流圏オゾンの前駆物質であるが、それ自身も有毒な汚染気体である。対流圏オゾンの寿命が1~2週間であるのに対し、COの寿命は2週間~2ヶ月と長く、大陸規模で輸送され、他地域において間接的にオゾンを増加させる働きを持つ。COのグローバルな収支を表1.1に示す。これによればCOの大気中での化学反応以外の発生源としては化石燃料及び産業活動、バイオマス燃焼といった地表からの排出（エミッション）が主であることがわかる。これら地表エミッション量は世界各機関によって推定されている。図1.3はEuropean Commission Joint Research Centre（EC/JRC）とNetherlands Environmental Assessment Agency（PBL）との共同プロジェクトによって開発された温室効果気体及びオゾン前駆気体の2000年ベースの地表エミッションデータセットThe EDGAR 3.2 Fast Track 2000 dataset（EDGAR32FT2000）による全球のCOエミッション推定値を示している。化石燃料の燃焼/産業活動といった人為起源のエミッション（以下、これらのエミッションを単に人為起源エミッションを表記する）は北米、欧州、中国、インドで高いが、特に中国、インドで顕著である。バイオマス燃焼起源のエミッションは南米、東南アジア、アフリカで特に高い値となっている。バイオマス燃焼の発生は乾季に頻発し、雨季にはほとんど発生しないという特徴があり、大きな季節変動性を持っている。人為起源エミッション量、バイオマス燃焼起源エミッション量を合わせた合計値では南~東アジア域で高排出量となっており、汚染が深刻であることがわかる。

表 1.1 現在のグローバルな CO の収支 (Daniel J. Jacob, 大気化学入門[2002])

	推定値の範囲 (Tg CO yr <sup>-1</sup> )
発生源	1800-2700
化石燃料の燃焼/産業活動	300-550
バイオマス燃焼	300-700
植生	60-160
海洋	20-200
メタンの酸化	400-1000
NMHC の酸化	200-600
消失源	2100-3000
対流圏 OH による酸化	1400-2600
成層圏	~100
土壌への取り込み	250-640

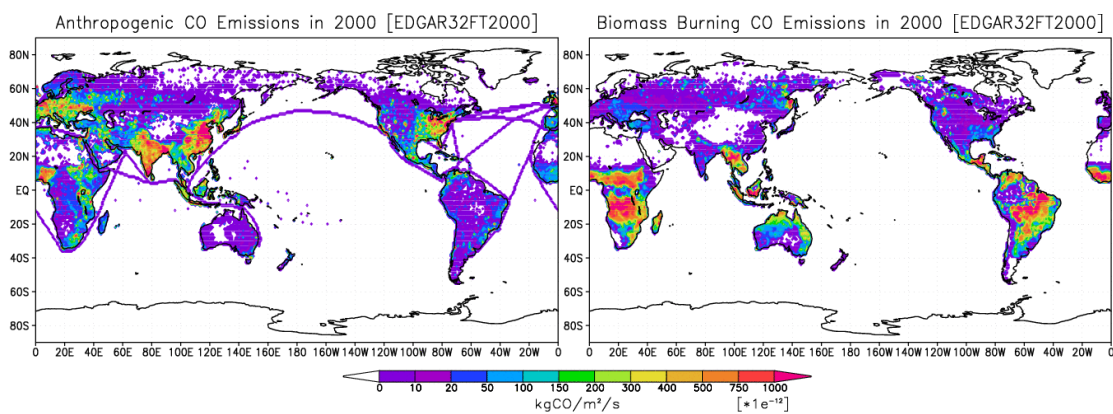


図 1.3 CO エミッションのグローバル分布 (EDGAR32FT2000)

左 : anthropogenic エミッション 右 : biomass burning エミッション



### 1.3.2 NO<sub>x</sub>

NO<sub>x</sub>は1.2節で示したように、オゾンの光化学生成に欠かせない物質である。寿命は約1日～数日と短く、直接長距離で輸送されることはないが、化学反応によってオゾンを生成するため、それらが、水平移流や鉛直流によって輸送される。表 1.2 にグローバルな NO<sub>x</sub> のソース、図 1.4 に NO<sub>x</sub> エミッションのグローバル分布を示す。CO 同様に地表エミッションの多くは化石燃料の燃焼/産業活動、バイオマス燃焼であるが、化石燃料の燃焼/産業活動が全ソースのうち 2/3 を占めており、より人為起源の影響が強いことがわかる。全球の分布についても CO と同様の傾向があることがわかる。

表 1.2 現在の対流圏 NO<sub>x</sub> の発生源 (Daniel J. Jacob, 大気化学入門[2002])

	発生量 (Tg N yr <sup>-1</sup> )
化石燃料の燃焼/産業活動	21
バイオマス燃焼	12
土壌	6
雷放電	3
NH <sub>3</sub> の酸化	3
航空機	0.5
成層圏への輸送	0.1

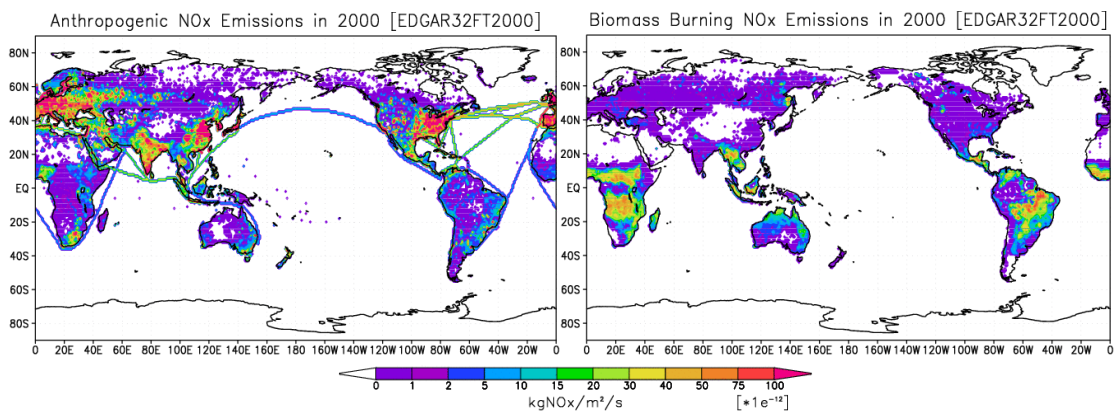


図 1.4 NO<sub>x</sub> エミッションのグローバル分布図 (EDGAR32FT2000)

左 : anthropogenic エミッション 右 : biomass burning エミッション

## 1.4 アジア域における大気汚染

これまで述べたように、アジア域には中国、インドという人為起源エミッションが高排出量の国があるため、その国内で大気汚染が深刻化するのはもちろんであるが、近隣の国々に対しても物質輸送による越境汚染が懸念されている。北半球春季における中国から日本への越境汚染は2000年以降、衛星搭載センサによる観測や地表での観測などによってたびたび見られるようになってきている。また近年では、観測だけでなく、大気化学輸送モデル(CTM: Chemical Transport Model)を用いた数値実験によっても中国から日本への輸送の再現が行われている(cf. K. Yamaji et al., 2006)。東アジアは春季には対流圏下部で西風が強くなるが、秋季から冬季にかけてはアジアモンスーンによる北東風が強くなるため、その風下側であるタイなどの東南アジアの北部においても中国域からの汚染物質の輸送による越境汚染の可能性が考えられる。しかしながら、オゾン、オゾン前駆物質の地表観測点が多く、その濃度変動や輸送の状況に対する理解が進んでいる日本に対して、東南アジア北部においては十分な理解を得られるほど、1990年代前半まではほとんど長期的な観測が行われていなかった。そのような状況ではあったが、Pakpong et al.(2003)は1997~2000年にタイのルーラル地域の Srinakarin において、地表オゾン、CO の連続観測を行い、この地域における季節変動に対して次節の述べる知見を得ることに成功している。

## 1.5 タイにおける対流圏オゾン、CO の濃度変動

図 1.5、1.6 に Pakpon et al. (2001;2003) によるタイの連続観測で得られた地表オゾン、CO 濃度の季節変動を示す。オゾン、CO とも、1~4 月が高濃度期、5~6 月が濃度減少期、7~9 月が低濃度期、10~12 月が濃度増加期と、明瞭な季節変化が見られる。これらの季節変化の要因としては主として風系の変化及びバイオマス燃焼の頻発が考えられる。

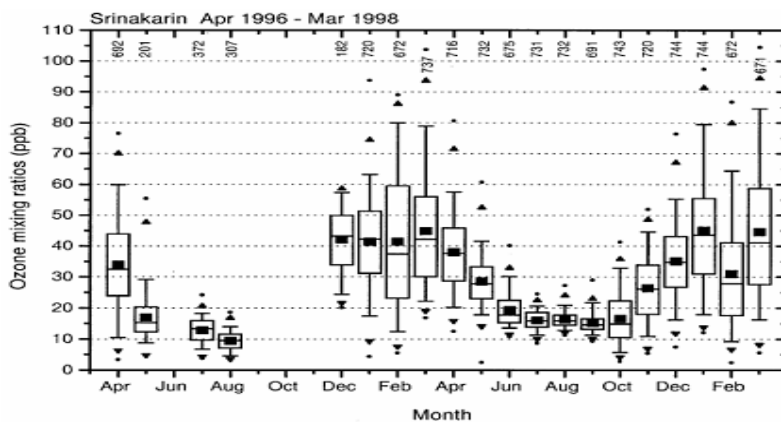


図 1.5 タイルーラル域 Srinakarin における地表オゾンの季節変化  
(Pochanart et al., 2001)

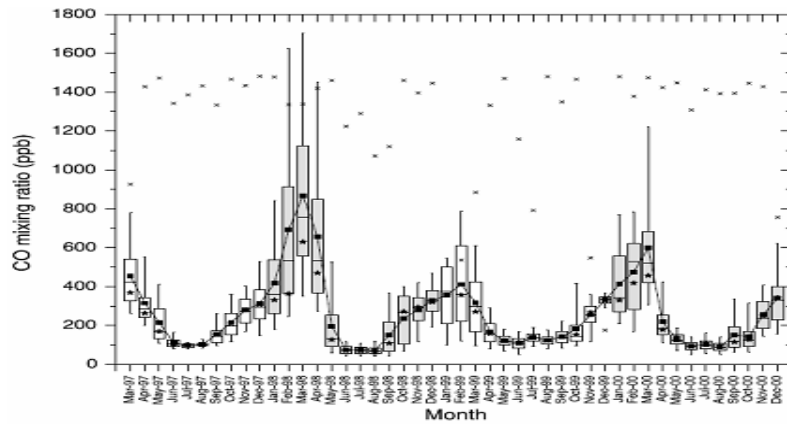


図 1.6 タイルーラル域 Srinakarin における地表 CO の季節変化 (Pochanart et al., 2003)

まず風系の変化については、観測が行われてきたタイを含む東南アジア北部の対流圏の大気場はアジアモンスーンに支配されていることが強く影響している。図 1.7 は 2007 年 5 月～2008 年 4 月の 1 年間における南～東アジア対流圏下部の風系を 1 ヶ月ごとに示している。5～9 月にかけては南西モンスーンが支配的になり、東南アジア北部では、雨季になり、10～2 月にかけては北東モンスーンが支配的になり乾季になる。南西モンスーンによるインド洋からの清浄気塊の輸送及び、雨季による日射の減少によって、5～9 月は濃度が低くなる。一方、北東モンスーンによる大陸からの汚染気塊の流入によって、10～2 月は濃度が高くなる。図 1.8 は 7～12 月における CO 濃度と後方流跡線によって得られた輸送経路との関係を示しており、気塊の輸送経路が南西インド洋である場合は有意に低濃度、北/北東大陸の場合には有意に高濃度であることがわかる。

そして、1.3 節で述べたように東南アジア北部はバイオマス燃焼が発生しやすい地域である。図 1.9 に 2006 年 9 月～2007 年 8 月及び 2007 年 9 月～2008 年 8 月に衛星観測センサ MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) によって観測された東南アジア北部における火災の発生数を示す。年による差は若干見られるが、両年とも共通して 12～5 月にかけて発生し、1 月中旬～4 月にかけて頻発していることがわかる。この季節は特に乾燥して地表気温も高くなるため、東南アジア北部内でのバイオマス燃焼の頻発に伴うエミッションの増加によって濃度が最も高くなる。以上のようにアジアモンスーン及びバイオマス燃焼の発生によってタイルーラル地域における濃度変動がつけられていると Pochanart (2001: 2003) は結論付けている。

北ら (2009) はタイのルーラル地域 Phimai において地表オゾン、CO の観測を 2007 年以降行い、それらの濃度変動について解析している。観測点の違いや年による違いはあるものの、Pochanart et al. (2001: 2003) で得られた濃度変動と同様、雨季の濃度減少及び濃度最小、乾季前半の濃度増加、乾季後半の濃度最大という変化が確認されている。さら

に、後方流跡線を用いて、乾季における気塊の起源とオゾン、CO 濃度との関係を調べた結果、2007-2008 年においては中国大陸性の気塊が南シナ海性の気塊よりもオゾン、CO 濃度ともにおよそ 1.5 倍も濃度が高くなっていることを示し、この違いが、中国における汚染の影響であることを示唆した。

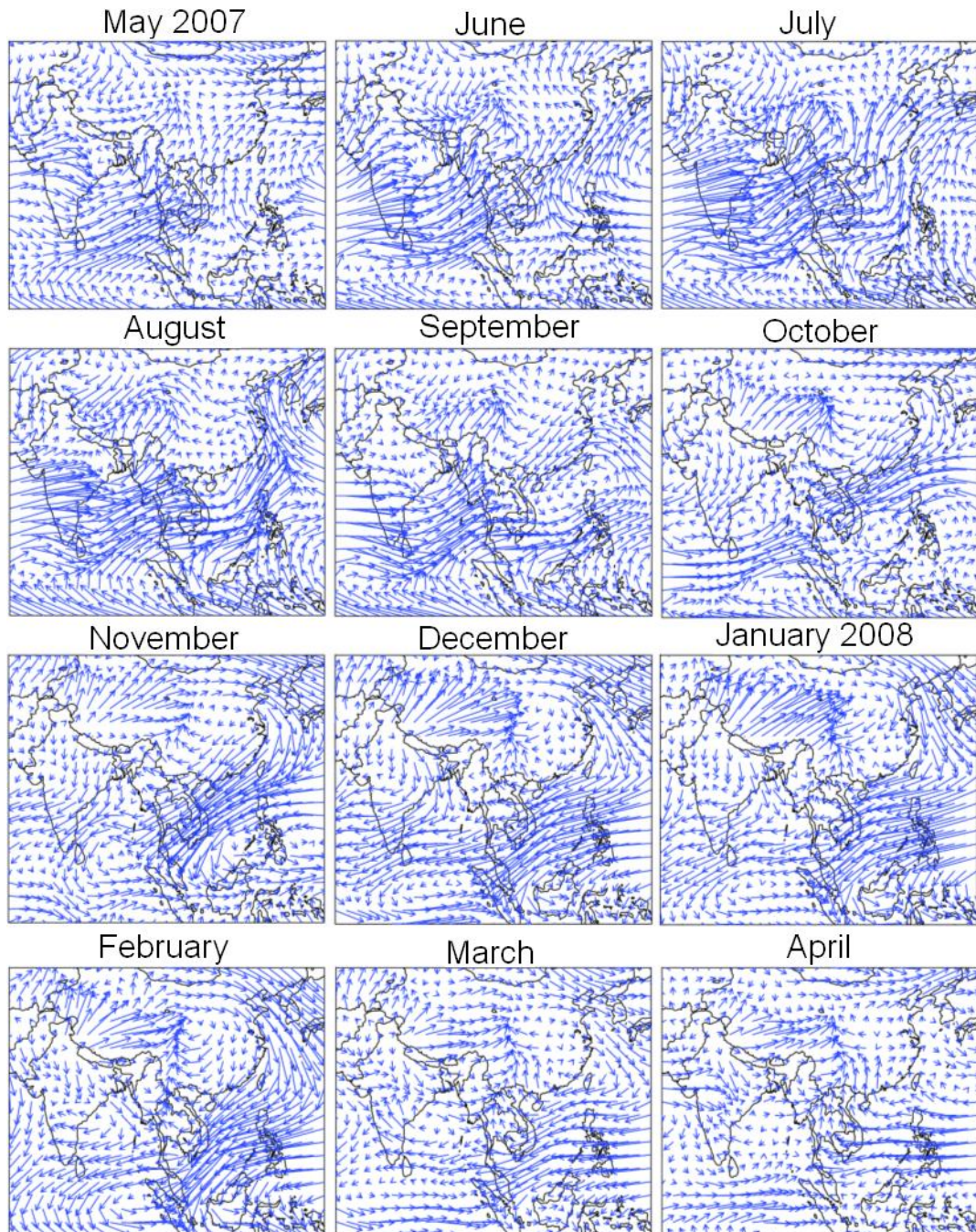


図 1.7 南～東アジアの対流圏下部（800hPa 高度）の風系  
2007 年 5 月～2008 年 4 月の各月の平均値（NCEP データを使用）

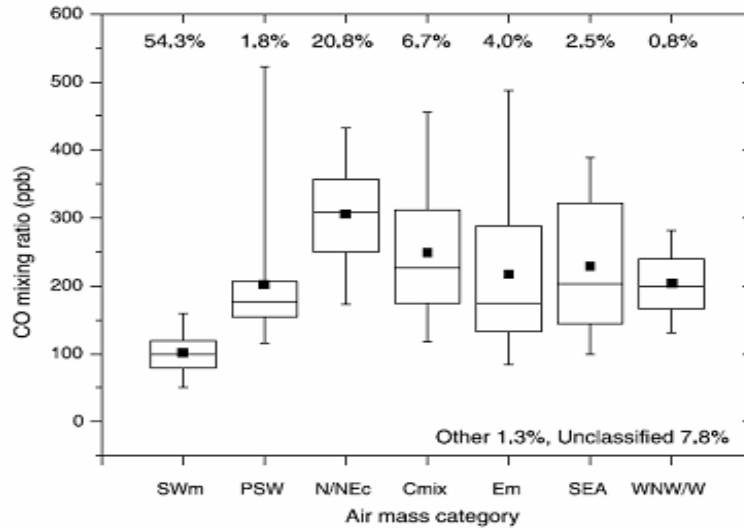


図 1.8 空気塊の輸送起源と CO 濃度との関係 (Pochanart et al., 2003) (SWm は南西インド洋気塊、PSW は南西汚染気塊、N/NEc は北/北東大陸性気塊、Cmix は東シナ海を含む大陸性気塊、Em は東シナ海気塊、SEA は東南アジア気塊、WNW/W は西北西/西大陸性気塊を示す。7~12 月の値を平均している。)

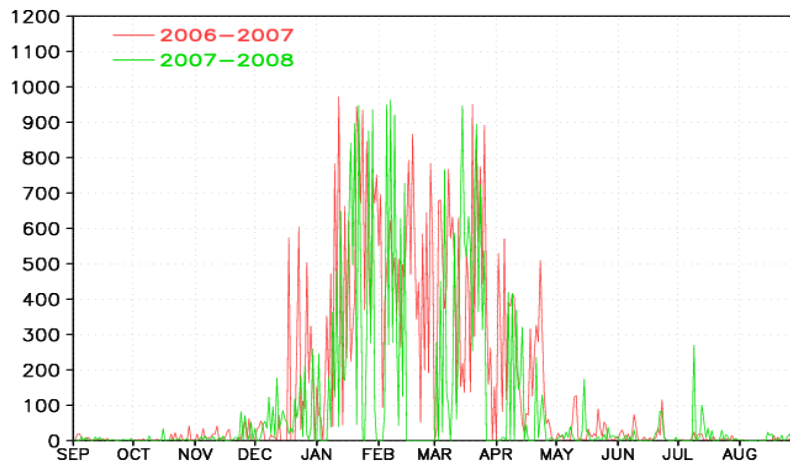


図 1.9 東南アジア北部における燃焼発生回数の季節変動 (MODIS の火災データを使用)

## 1.6 本研究の目的

1.5 節で述べた濃度変動の議論は後方流跡線解析及び衛星観測によって得られた HotSpots（地上において高温になり、バイオマス燃焼の発生の指標となるもの）の解析によって示されたものである。後方流跡線解析とは空気塊を追跡することによって描かれる軌跡によって輸送経路を特定し解析する手法であるが、この後方流跡線のための議論では大気の流れは解析することができ、ある程度輸送の解釈をすることはできるが、オゾンや CO が人為由来のエミッションを起源とするのか、バイオマス燃焼由来のエミッションを起源とするのかを特定することはできない。また、化学反応がどのように起こり、汚染物質がどのような時空間変動をしているかを理解するためには限られた観測データのみからでは限界がある。そこで、より詳細に濃度変動の要因を理解するために CTM を用いた研究を行うことが効果的である。

そこで、本研究では CTM を用いた数値実験を行う。特にタイにおいて北東大陸風が強くなる時期に着目し、その季節の濃度変動の特徴、及び中国大陸での人為起源エミッションや東南アジアでのバイオマス燃焼が定量的にどの程度、タイの大気に影響を与えるかを調べることを目的とする。

## 2 手法

### 2.1 モデル

本研究では、1.6 で述べたように化学輸送モデル (CTM) を使用して研究を進める。使用した CTM は WRF/Chem (Grell et al., 2005) Ver3.0.1 である。本モデルは Grell et al. (2000) が領域気象モデル WRF (Weather Research and Forecasting) の先駆モデル PSU (the Pennsylvania State University) /NCAR (National Center for Atmospheric Research) MM5 (mesoscale model Version 5) に適用していた化学種計算モジュールを WRF に移植し開発されたものである。本 CTM はオンラインカップルモデルであり、化学反応過程の計算を気象場の計算と同一の空間分解能、計算タイムステップで計算することが可能である。

### 2.2 モデル設定

#### 2.2.1 計算領域・解像度

本研究で使用した計算領域を図 2.1 に示す。

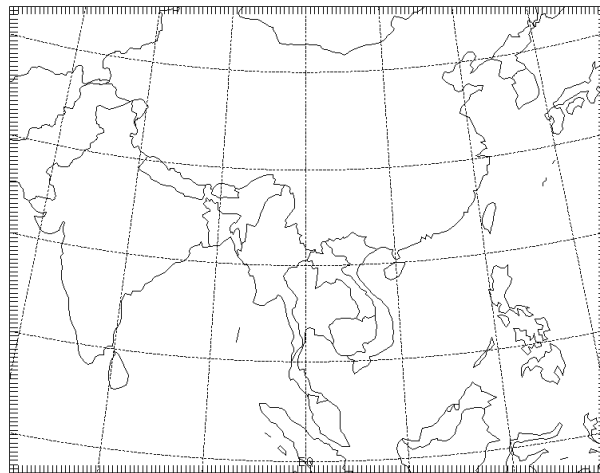


図 2.1 本研究で使用したモデルの計算領域

本研究では水平分解能を  $50\text{km} \times 50\text{km}$ 、鉛直方向には地表面から  $50\text{hPa}$  高度までを 27 層に分解し、計算を行った。水平分解能を  $50\text{km} \times 50\text{km}$  としたのは、後に述べるが、モデル内に地表エミッション量を与える際に用いたエミッションインベントリーの解像度が  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$  であること、及び計算機資源を考慮したためである。鉛直座標系については、WRF では  $\eta$  座標系を用いて計算を行う。 $\eta$  座標系は  $p_h$  を圧力の静水圧成分、 $p_{ht}$  を上端の気圧、 $p_{hs}$  を地上気圧としたとき、以下の式によって示すことができる。

$$\eta = \frac{p_h - p_{ht}}{\mu}$$

$$\mu = p_{hs} - p_{ht}$$

本研究では  $p_{ht} = 50\text{hPa}$  とした。

### 2.2.2 計算期間

1.6 で述べた通り、本研究ではタイにおいて北東大陸風が支配的となる乾季の前半に焦点を当てるため、その期間に計算期間を設定する。また、比較検証用のデータが存在する必要がある。以上の理由から、北ら（2009）のデータが存在し、北東大陸風が支配的である2007年10月から2008年2月を計算期間とした。なお、この時期の風系は図1.7に示す通りである。

### 2.2.3 初期値・境界値

気象場の初期値には客観解析データである NCEP FNL Operational Model Global Tropospheric Analyses（以下、NCEP FNL データと表記）を使用した。このデータセットの水平分解能は  $1^\circ \times 1^\circ$ 、鉛直分解能は 1000hPa 高度から 10hPa 高度の 26 層、時間分解能は 6 時間である。このグリッドデータを内挿して WRF の計算領域に与えた。側面境界値には、このデータセットを 6 時間毎にモデルに与えた。

化学種の初期値には大気化学気候モデル CCSR/NIES/FRCGC CHASER（Chemical AGCM for Study of atmospheric Environment and Radiative forcing）（Sudo et al., 2002a; 2002b; Sudo 2003）で計算された値（以下、CHASER アウトプットデータと表記）を使用した。CHASER は対流圏での化学種計算に特化したモデルである。詳細は Sudo et al.(2002a)を参照されたい。今回使用した CHASER の水平分解能は約  $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ 、鉛直分解能は地表面～高度 40km までの 32 層であり、このグリッドデータを内挿して WRF の計算領域に与えた。側面境界値には、これらの値を気象場の境界値と同様の時間間隔で与えた。



#### 2.2.4 ナッジング

ナッジングとはデータ同化手法のひとつで、モデルの予報値と観測値との差をニュートン緩和法で補正する方法である。ナッジングを用いることで現実大気をより忠実に再現することが期待される。本研究では、このナッジングを東西風、南北風及び気温に対して適用した。ナッジングは任意の物理量  $X$  の予測式

$$\frac{\partial X}{\partial t} = F(X)$$

に対して、観測値（客観解析データ） $X_{obs}$  との誤差に係数  $\alpha$  をかけた項を付加した式

$$\frac{\partial X}{\partial t} = F(X) - \alpha(X - X_{obs})$$

によって表される。観測値として、初期値、境界値と同様に NCEP FNL データを内挿して鉛直全層、各グリッドに 6 時間毎に与え、東西風、南北風において  $\alpha=0.0003$  ( $s^{-1}$ )、気温において  $\alpha=0.0015$  ( $s^{-1}$ ) とした。なお、ナッジングを適用した場合と適用しない場合における結果を比較し、ナッジングを適用した場合の方が、気象要素だけでなく、オゾン、CO などの化学種の再現性が良いことを確認した。

#### 2.2.5 化学反応系

本研究で用いた化学反応系は気相反応、光解離反応を考慮しており、エアロゾル化学種及び、気体とエアロゾルとの不均一反応は考慮していない。計算しているのは無機安定種が 14、反応中間体が 4、 $O_2$ 、 $N_2$ 、 $H_2O$  の主要大気安定成分が 3、有機化学種が 26、ペルオキシラジカルが 16 の全 63 化学種・155 反応である。これらの詳細は Stockwell et al.(1990) を参照されたい。

#### 2.2.6 地表エミッション

CTM での計算において、地表境界条件として与える地表エミッションは短寿命化学種の分布や濃度変動に大きな影響を及ぼす重要な要素である。エミッションは 1 章 3 節で述べたように主として、人為起源のものとバイオマス燃焼起源のものに分けることができる。本研究では、人為起源エミッションには REAS (Regional Emission in ASia) (Ohara et al., 2007) を使用した。REAS はアジア域に特化して作成されたインベントリーである。データは空間分解能が  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 、時間分解能が 1 年毎であり、本研究では計算期間に合わせて 2007 年の値を採用した。REAS の空間分解能及び、限られた計算機資源から水平分解能を  $50km \times 50km$  の  $140 \times 110grid$  として計算を行った。また、バイオマス燃焼起源エミッションには GFEDv2 (Global Fire Emissions Database version2) (James et al., 2005)

の月間データを使用した。GFEDv2 のデータは 1997 年から 2006 年までのデータセットが利用可能であったが、本研究での計算期間は 2007~2008 年であるため、10 年間の平均値を毎月毎に算出し、その値を使用した。また、NO<sub>x</sub> は土壌起源のエミッションも考慮し、REAS インベントリーの値を使用した。以上のエミッションデータをそれぞれ、時間間隔 1 時間とし、さらに、鉛直方向に 1 層であるデータを最下層から上層 7 層へと変換した。人為起源エミッションとして与えた量には、国立環境研究所によって作成された日本領域のエミッションインベントリー EAggrid2000 (East Asian Air Pollutant Emissions Grid Inventory) (K. Murano, personal communication) で用いられている日変化の割合の値を参考にし、日変動を与えた。これは、人為起源エミッションが交通や産業活動といった人間活動に左右される要素を持つからである。一方、バイオマス燃焼起源エミッションの日変動性は与えなかった。これはバイオマス燃焼の発生が特定の日変化を持っていないためである。鉛直方向への与え方は anthropogenic エミッションには EAggrid2000 を、biomass burning には Longo, Karla M. and Saulo R. Freitas (2006) を参考にした。なお、土壌起源のエミッションにはこれらのフラクションは与えていない。これらのデータを足し合わせエミッションデータセットを作成し、地表境界条件としてモデル領域内に与えた。図 2.2 に本研究で使用した REAS による人為起源エミッション、及び GFEDv2 による CO のバイオマス燃焼起源エミッションの空間分布図を示す。

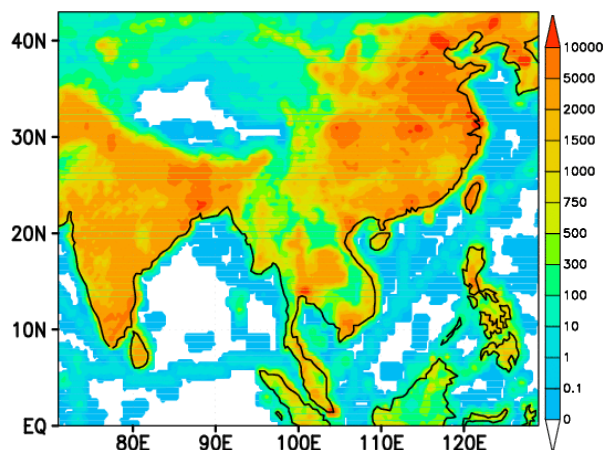


図 2.2 本研究で使用した REAS インベントリーによる anthropogenic CO エミッションの空間分布 (mole/m<sup>2</sup>/day) 2007 年の値を示す。

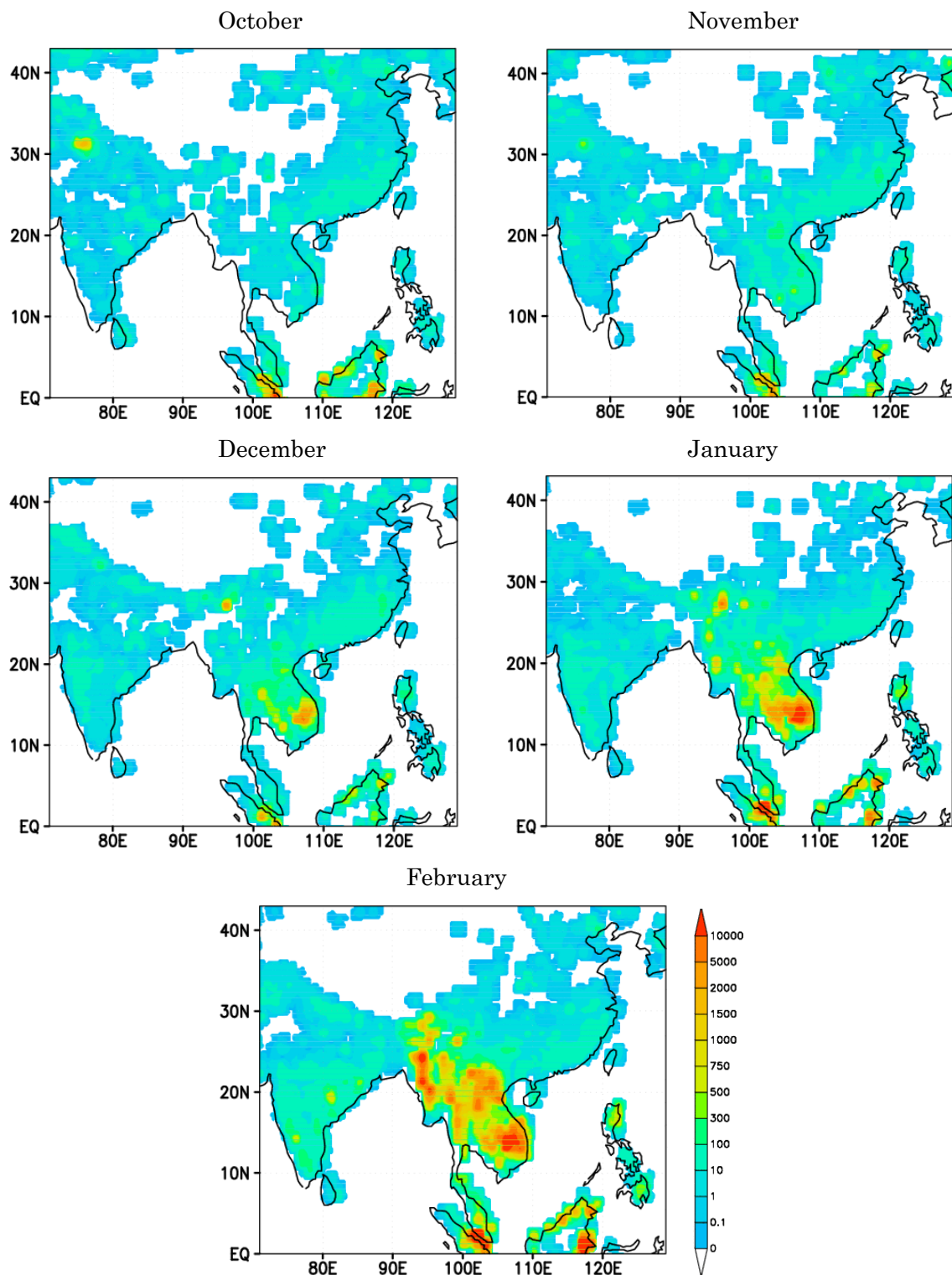


図 2.3 本研究で使用了 GFEDv2 インベントリーによる biomass burning CO エMISSIONの空間分布 (mole/m<sup>2</sup>/day) 1997~2006 年の各月の平均値を示す。

## 2.2.7 物理過程

気象モデルではグリッドスケールで表現しきれないサブグリッドスケールの現象を物理過程として取り扱う。物理過程の中で、下部対流圏での短寿命化学種に対して大きく影響を与えるのが、境界層乱流過程である。本研究では、境界層乱流過程として Mellow-Yamada Level 2.5 をの改良モデル (Janjic, 1990, 1996, 2002) を使用した。本モデルは気象分野において最も広く使用されている。また、積雲対流も本研究での水平分解能においてはサブグリッドスケールの現象となり、物理過程として取り扱う必要がある。本研究では、積雲パラメタリゼーションとして Grell-3 (Grell and Devenyi, 2002) のスキームを用いた。

## 2.2.8 モデル設定のまとめ

表 2.1 に本研究で使用したモデルの設定についてまとめる。

表 2.1 本研究でのモデル設定

使用モデル	WRF/Chem Ver3.0.1	
中心座標	100° E, 22.5° N	
水平分解能	50km×50km	
格子点数	140grid×110grid	
鉛直分解能	28 層	
計算期間	2007/10～2008/2	
出力間隔	1 時間毎	
計算タイムステップ	力学・物理過程	5 分
	化学過程	5 分
初期値・境界値	気象場	NCEP FNL データ
	化学種	CHASER アウトプットデータ
ナッジング	東西風・南北風 ( $\alpha = 0.0003s^{-1}$ )、気温 ( $\alpha = 0.0015s^{-1}$ ) 鉛直全層に適用	
地表エミッション	anthropogenic	REAS inventory
	biomass burning	GFEDv2 inventory
	soil	REAS inventory
境界層乱流過程	Mellow-Yamada-Janjic (Eta) TKE scheme (Janjic(1990,1996,2002), Mellor and Yamada(1982))	
積雲パラメタリゼーション	Grell-3 scheme (Grell and Devenyi(2002))	

## 2.3 観測データ

本節では、モデル計算値が現実的であるかどうかを検証するために使用するデータについて説明する。

### 2.3.1 地表観測データ

北ら (2009) 及び SKYNET のタイルーラル地域 Phimai におけるデータ、及び温室効果ガス世界資料センター (World Data Centre for Global Gases; WDCGG) に気象庁 (Japan Meteorological Agency; JMA) が提供している Yonagunijima のデータを使用した。表 2.2 に使用データの詳細について示す。

表 2.2 地表観測点データの概要

観測点名称		Phimai (北他,2009;SKYNET)	Yonagunijima (WDCGG)
観測点位置		102.57° E, 15.18° N, 220m ASL	123.02° E, 24.07° N, 20m ASL
比較対象	物質	O <sub>3</sub> 濃度・CO濃度	O <sub>3</sub> 濃度・CO濃度
	気象	気温・風速・風向	気温・風速

### 2.3.3 オゾンゾンデデータ

境界層から下部自由対流圏におけるオゾン濃度の再現性を確認するためにオゾンゾンデデータとの比較を行った。World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre (WOUDC) に Hong Kong Observatory (HKO) が提供している Hong Kong におけるデータ及び、独立行政法人海洋研究開発機構によって観測取得された Hanoi におけるデータを使用した。モデル計算期間である 2007/10~2008/02 に HongKong では合計 19 日、Hanoi では合計 12 日オゾンゾンデが放球されており、1 日につき放球回数は 1 回である。HongKong、Hanoi とも UTC4:00~UTC6:00 に放球されている。それぞれのサイトにおける放球日時を表 2.3 に示す。また、オゾンゾンデ観測点の位置を地表観測と合わせて図 2.4 に示す。

表 2.3 オゾンゾンデの放球日時

		HongKong	Hanoi
2007	October	3, 10, 17, 24, 31	25
	November	7, 14, 21	14, 27
	December	5, 12, 19	18, 27
2008	January	2, 9, 16, 23	11, 14, 16, 18
	February	4, 13, 20	1, 15, 25

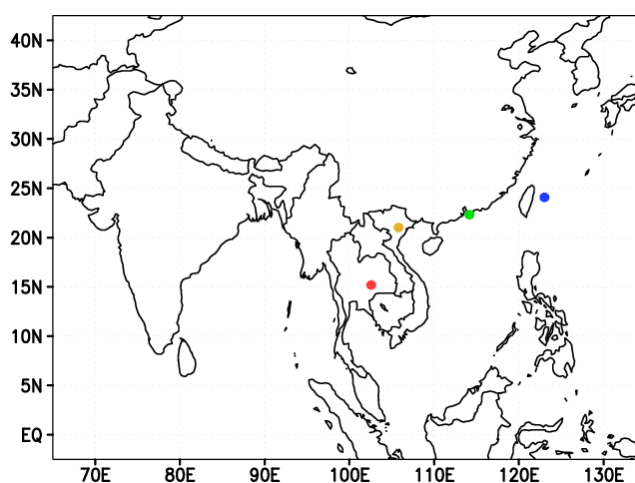


図 2.4 モデル計算結果の比較に用いた地表観測点及びオゾンゾンデ観測点の位置  
赤 : Phimai 青 : Yonagunjima 緑 : HongKong 黄 : Hanoi

### 2.3.3 衛星観測データ

CO 濃度空間分布の比較検証用として Terra 衛星に搭載された MOPITT (Measurements of Pollution in Troposphere) (Emmos et al., 2004) センサにより取得されたデータを使用した。MOPITT データは水平分解能が 22km×22km であり、およそ 3 日で全球をカバーする。鉛直方向には対流圏カラム、地表、900~100hPa 高度までを 100hPa 毎のデータが利用可能であるが、本研究では地表及び 800hpa 高度のデータを使用した。

## 第3章 モデル計算結果と観測との比較

本章では第2章の計算設定によって計算された標準実験（以下、CTL 実験）の結果と地表観測データ、衛星観測データ、ラジオゾンデデータとを比較し、モデルの再現性を確認する。

### 3.1 地表観測点との比較

CTL 実験の計算結果と 2.2 節に示した Phimai、Yonagunijima の両地表観測点データとの比較を行った。Phimai はタイのルーラルサイト、Yonagunijima は台湾に近いリモートサイトである。モデル計算値、観測値ともに 1 時間データを 1 日平均値として算出した値を比較した。Phimai、Yonagunijima 両観測点における各要素の時系列比較を図 3.1 に示す。さらに、各要素について計算値と観測値の 1 時間値での相関係数を表 3.2 にまとめた。

Phimai のオゾンに関しては、モデル計算値が観測値を過大評価する傾向が見られたが、濃度増加、濃度減少のタイミングは概ね一致していた。ただし、2007/12 中旬～下旬に観測で濃度減少し、低濃度であったのに対し、モデルでは、濃度減少が再現されず、20～30ppb の大きな過大評価となった。これは観測で風向の変化によって南～西からの海洋性の空気が流入している様子が見られるのに対し、モデルでは 12/14～15 での風向が南～西に変化せず、海洋性気塊が流入していないことが一因として考えられる。CO 濃度に関しては、観測で低濃度の時には定量的にもよく再現されていたが、高濃度の時には 150～300ppb 程度、過小評価の傾向が見られた。しかし、オゾン同様、増加・減少のタイミングは概ね一致していた。高濃度時の過小評価の原因としては、モデルに与えたエミッション量が現実よりも低いという可能性が考えられる。また、1 月以降の大きな過小評価に関しては上記の原因及び時間分解能が小さいことによる影響も考えられる。Yonagunijima においてはオゾン濃度の値、CO 濃度ともに良い一致を示した。CO 濃度に関しては濃度増加、濃度減少のタイミングをほぼ観測を再現できている。

続いて気象要素に関しては、本実験では 2.2.6 で述べたように気温、東西風成分、南北風成分をナッジングさせており、計算値を客観解析データの値に近づけている。気温は Phimai、Yonagunijima とも相関係数 0.9 以上であり、よい一致を示している。風速に関しては Phimai、Yonagunijima とも増加・減少のタイミングがよく再現されている。ただし、Phimai では 10～12 月に 1～2m/s 程度の過大評価となっている。

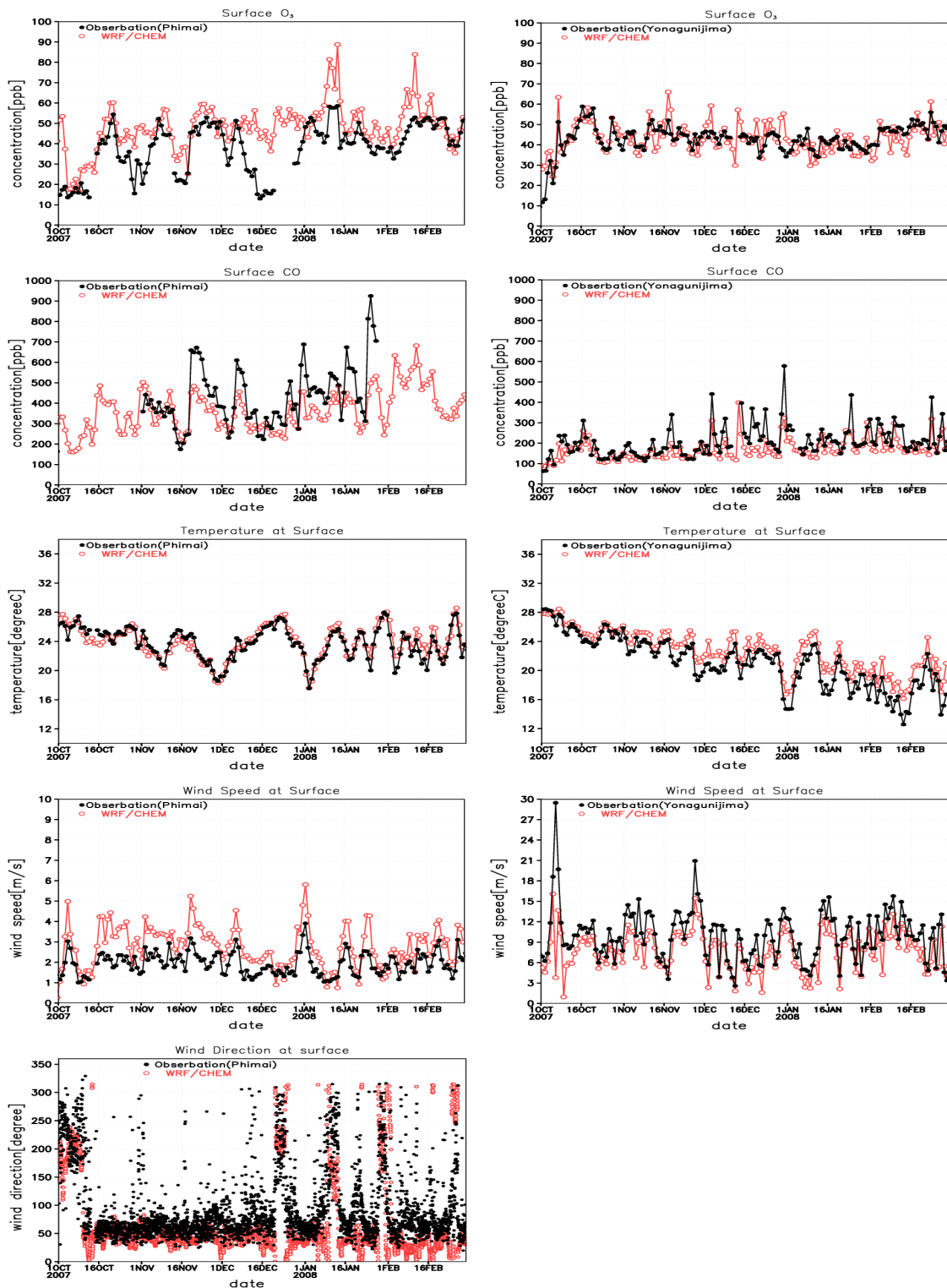


図 3.1 各要素の観測値とモデル計算値との比較 (1日平均値、風向のみ1時間値)

左: Phimai 右: Yonagunijima

1 段目: オゾン濃度 2 段目: CO 濃度 3 段目: 気温 4 段目: 風速 5 段目: 風向



表 3.1 モデル計算値と観測値との相関係数（1 時間値）

	Phimai	Yonagunijima
オゾン濃度	0.69	0.67
CO 濃度	0.79	0.83
気温	0.92	0.95
風速	0.71	0.82
風向	0.6	—

### 3.2 オゾンゾンデとの比較

2.2 節で述べた HongKong、Hanoi におけるオゾンゾンデ観測とモデル計算値との比較を行った。境界層から下部自由対流圏にかけて北東大陸風が強まるため、この高度における濃度が定量的に再現できているかを確認する。境界層から下部自由対流圏に対応する 950～700hPa 高度でのオゾンゾンデ、モデル計算値ともに高度平均した値を比較した。モデル計算値は放球された時刻前後 1 時間で平均した値を用いた。比較結果を図 3.2 に示す。

Hanoi において 2 日ほど、モデル計算値が観測値を 20～25ppb 程度過大評価しているが、その 2 日を除いた全期間で 10ppb 以内の差であり定量的に再現されていた。観測値とモデル計算値との時間方向の相関係数は HongKong において、0.86、Hanoi において 0.91 であり、この高度におけるオゾン濃度のモデル計算値は信頼性が高いといえる。

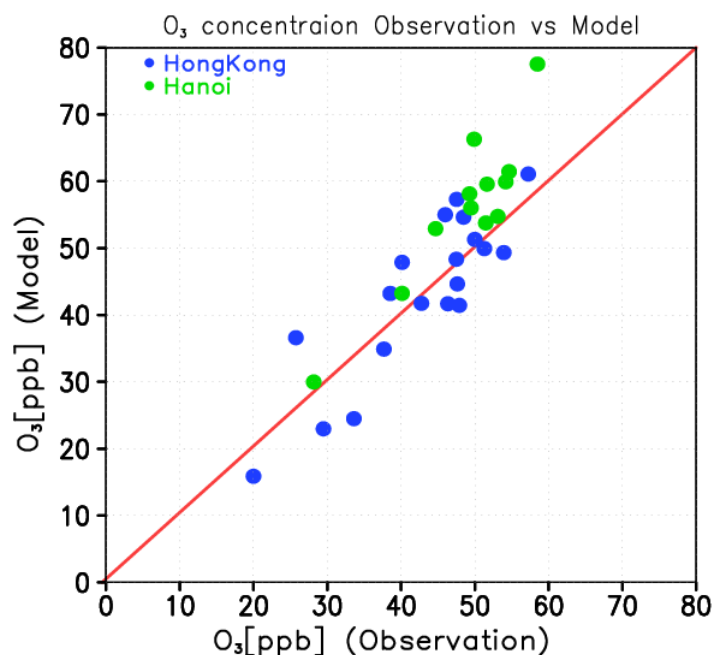


図 3.2 オゾンゾンデ観測値とモデル計算値との比較

950～700hPa 高度で平均した値を使用している。赤直線は傾き 1 の直線を示す。

### 3.3 衛星観測との比較

衛星搭載センサ MOPITT 観測データとモデル計算値との比較を行った。図 3.2、3.3 にそれぞれ地表、800hPa 高度におけるモデル計算値と観測値との CO 濃度の比較を示す。

地表においては 2007/10～2007/11、2007/12～2008/02 とともに中国の四川盆地、華北平原での高濃度やインドのヒンドスタン平原での高濃度など、空間的な分布はよく再現されていた。しかし、2007/10～2007/11 では陸上で全体的に観測値を過大評価している傾向が見られ、インド付近で 100ppb 程度の過大評価、タイ付近では 50～100ppb の過大評価であった。2007/12～2008/02 では陸上、海上とも空間な分布が良く再現されている。しかし、タイ付近で依然 25～50ppb の過大評価が見られる。800hPa 高度においては地表とは逆に 2007/10～2007/11 にタイ付近で過小評価であったが、その差は～25ppb 程度でありそれほど大きい差ではない。2007/12～2008/02 は全体的な分布傾向はよく再現されたが、インドやベンガル湾において 25ppb 程度の過小評価であった。3.1 において地表観測点の Phimai では急激な濃度増加の際に過小評価の傾向があったが、本節では地表のタイ付近において過大評価であり、両者で異なった結果を示している。これについては以下の理由が考えられる。図 3.2 において、タイ周辺の過大評価となっている場所に着目すると、図 2.2 で示した人為起源エミッション量が高い場所にあたる。そのため、モデルに与えた人為起源の CO エミッション自体が過大評価している可能性がある。また、地表で過大評価、800hPa 高度で過小評価であった点については、Kim et al.(2006)によっても同様の傾向が述べられている。Kim et al.(2006)は 校本研究と同様に CTM に WRF/Chem、境界層乱流過程に Mellow-Yamada level 2.5 を使用し、アメリカにおける CO 濃度が地表で過大評価、上層 1～2km で過小評価という結果を得ている。

上記に述べたように、モデル計算値と衛星観測値とで若干の差が見られたが、空間的な特徴は良く再現されており、全体的に概ね良い再現性といえる。

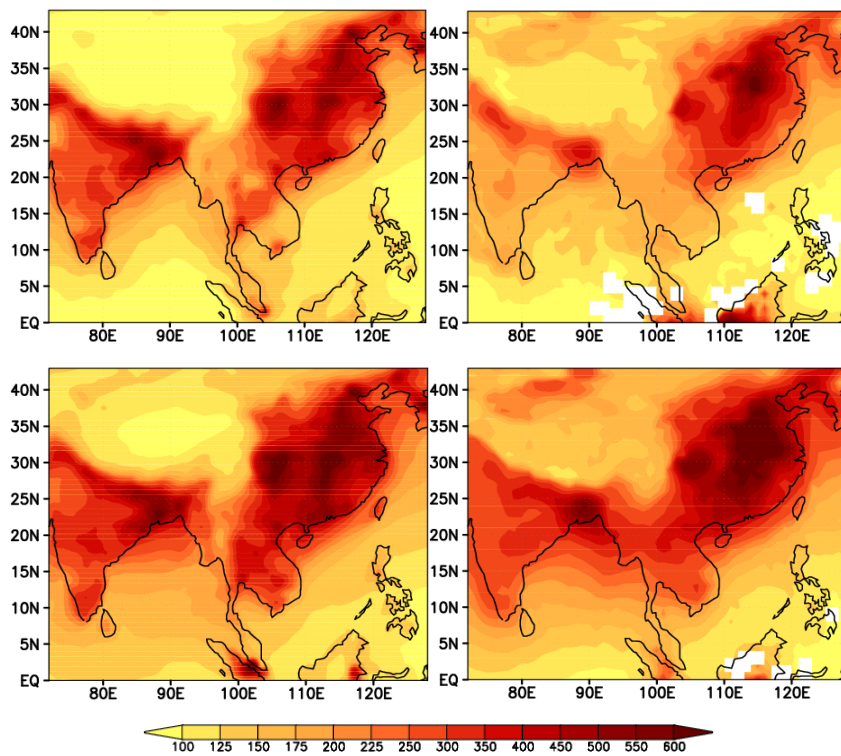


図 3.2 WRF/Chem の計算結果 (左) と MOPITT (右) の地表の CO 濃度 (ppb) の比較  
 上段 : 2007/10~2007/11 の平均 下段 : 2007/12~2008/02 の平均

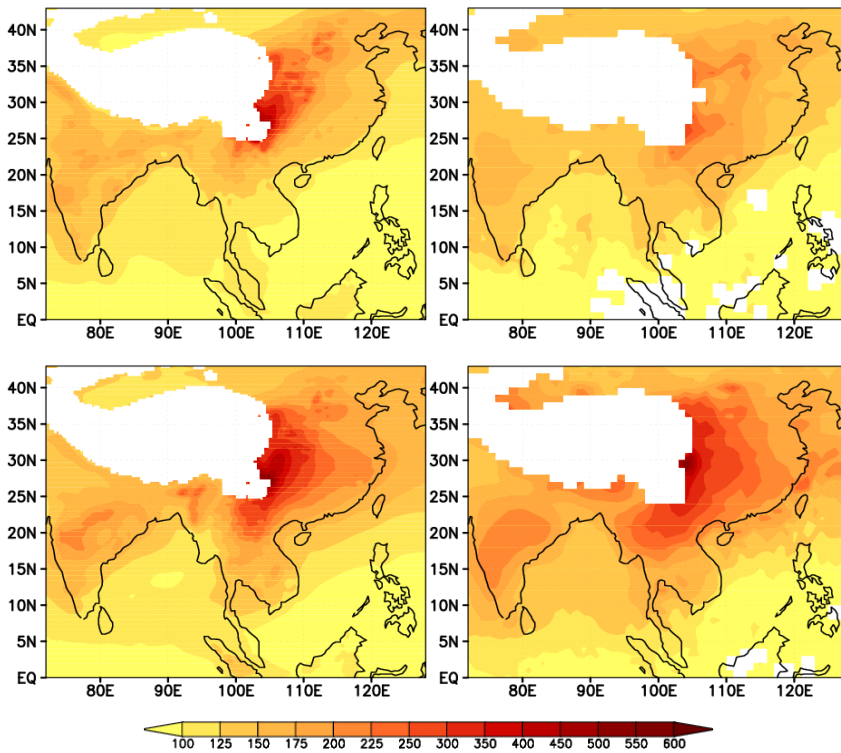


図 3.3 WRF/Chem (左) と MOPITT (右) の 800hPa 高度の CO 濃度 (ppb) の比較  
 上段 : 2007/10~2007/11 の平均 下段 : 2007/12~2008/02 の平均

## 第4章 濃度変動の解析

### 4.1 オゾン、CO 濃度変動

図 4.1 の地図で示した THAI の領域で平均した計算期間中のオゾン、CO 濃度変動を地表、境界層別に示す。オゾンは地表、境界層でほぼ同程度の濃度であり、増加・減少の変動もおおよそ同様のふるまいを見せている。濃度は 10 月中旬以降急激に増加し、60ppb 程度に達した後は増加・減少を繰り返している。増加のピークは 10~30 日の周期で見られる。一方、CO 濃度は地表での値が、境界層での値よりも 100~250ppb 高くなっている。しかし、増加・減少のサイクルはほぼ同程度であり、同様の要因によって濃度変動が起きていることが考えられる。また、10~2 月にかけて低濃度時、高濃度時の濃度がともに増加している。

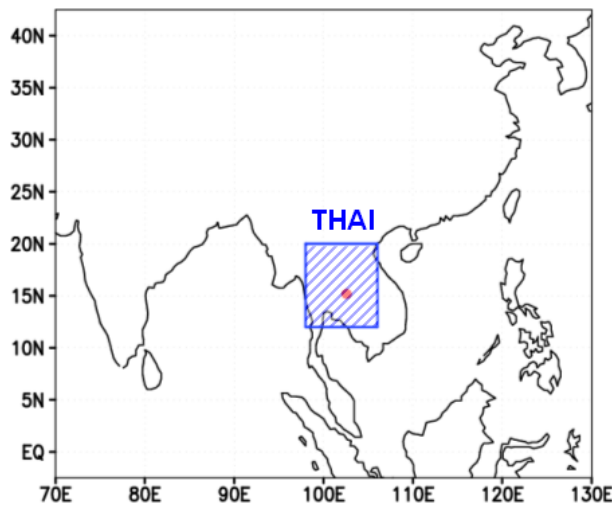


図 4.1 解析に用いた THAI の地図。赤点は Phimai を示す。

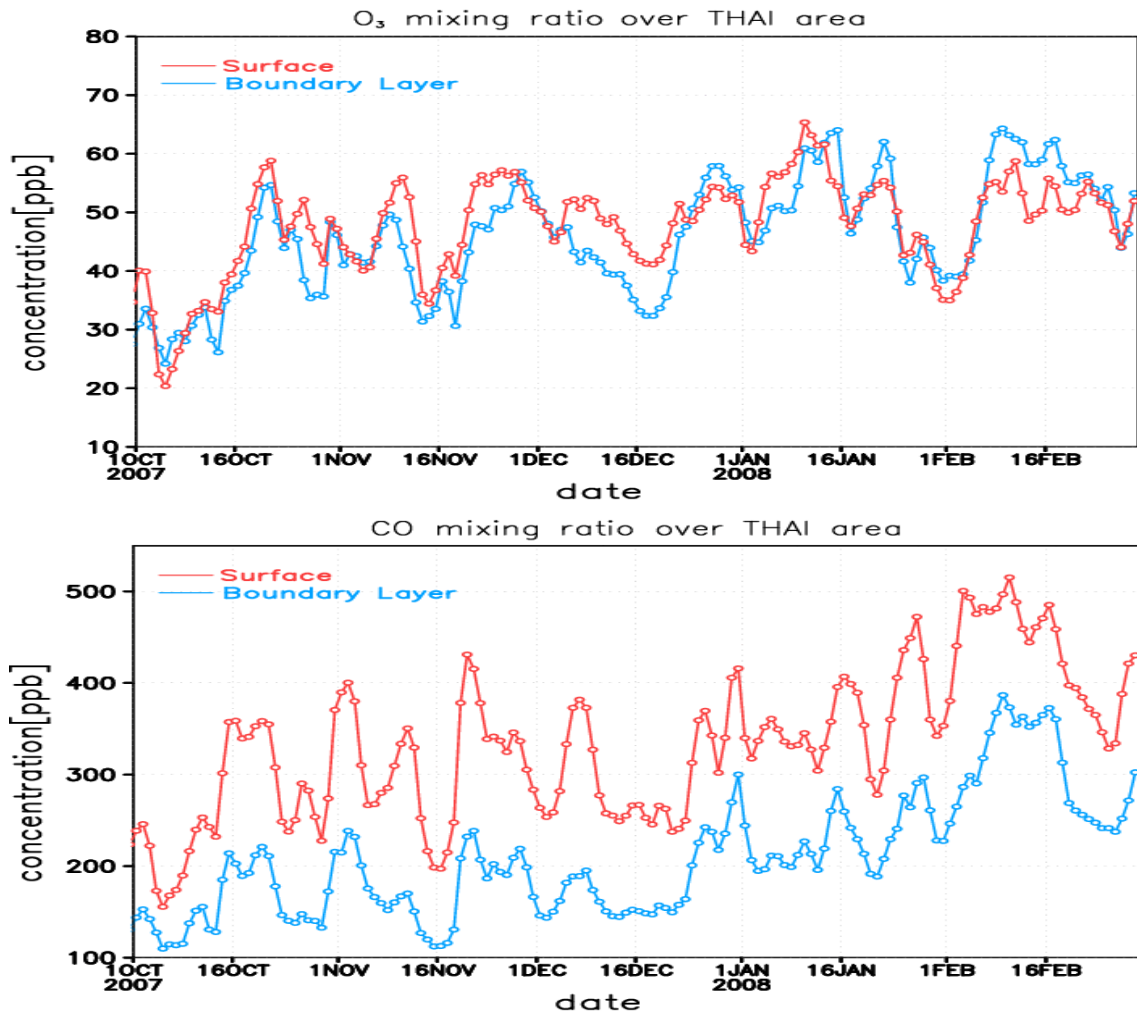


図 4.2 THAI 領域平均値の濃度 (ppb) 変動

上段：オゾン 下段：CO

赤：地表 青：境界層

## 4.2 収支解析

地表及び境界層でのオゾン、CO 濃度の時間変化の収支に着目することで、濃度変動の要因を調べた。境界層での濃度は 950~800hPa 高度での平均として算出した。対流圏の化学種の時間変化はモデル内において力学的な移流過程、成層圏からの降下過程、境界層乱流過程、積雲対流過程、沈着過程、及び化学反応過程、エミッション放出過程の各過程の時間変化の和で示される。反応性の高いオゾンやラジカル化学種において特に影響の強い過程は化学反応過程である。一方、CO のように寿命が長い化学種は化学反応過程よりも移流過程による影響のほうが強い。また、地表から排出される物質についてはエミッション放出過程の影響が強い。

図 4.3、4.4 に全期間におけるオゾン、CO 各濃度の時間変化及びその収支を示す。収支

は影響が特に小さい過程を除いて示している。オゾンに関しては、地表において化学反応過程が日平均では常に正の値を持っており、この過程が最もオゾン生成に寄与している。一方、境界層乱流過程は日平均すると常に負となっている。この二つの過程は両者とも日射に強く依存するという特徴を持っている。移流過程は化学反応過程、境界層乱流過程ほど、大きな時間変化をしないが、オゾン濃度の正味の時間変化は移流過程に似た変動をしている。10月中旬～12月上旬においては移流過程が正であり、この時期の濃度増加は化学反応過程と移流過程の両者が起因している。特に11月17～18日の濃度増加は移流過程が化学生成/消失過程に匹敵する値である。12月中旬以降は移流過程の値が負である日が多く、オゾン減少に起因している。この時期の正味の増加は化学反応過程の影響が強い。一方、境界層では、化学反応過程が常に正、境界層乱流過程が常に負であることは地表と同様だが、その値は地表よりも低くなっている。10月中旬～12月中旬に移流過程の方が化学反応過程よりも高くなっている日が数日見られたり、12月中旬以降、境界層乱流過程よりも低くなっていたりするなど、移流過程は地表よりも強い影響を持っていることがわかる。正味の時間変化も移流過程と似た変動をしており、境界層での移流過程の影響は地表におけるものよりも強くなっている。化学反応過程は12月中旬以降、それ以前と比較して5～10ppb/day高い値を示している。これらをまとめると、12月中旬以降では化学反応+移流過程、それ以前では化学反応過程が増加の主要因となっており、二つの期間でそれぞれ違った様相が見られるということがいえる。

COは地表でエミッション放出過程が常に+300～400ppb/dayと寄与が大きいですが、本モデルでは、エミッション排出量は同月の場合、日平均値が同じ値をとるため、直接的に日単位の濃度変動の要因とはなっていない。境界層乱流過程は常に負の値を持ち絶対量はエミッションと同程度である。そのため、正味の時間変化は大きく移流過程の影響を受けており、 $dO_3/dt$ と移流過程では似たような変動を示しており、両者の時間方向の相関係数は0.63と高い値であった。また、期間内に移流過程によって+50ppb/dayとなった日が8日見られるなど、一日を通して汚染空気塊の輸送が見られる。また、1月以降は移流過程が負であることが多い。境界層ではエミッション放出過程、境界層乱流過程の影響は地表に対して1桁小さくなっており、移流過程が濃度変動をほぼ支配している。つまり、増加、減少ともに主として移流過程によって生じているということがいえる。

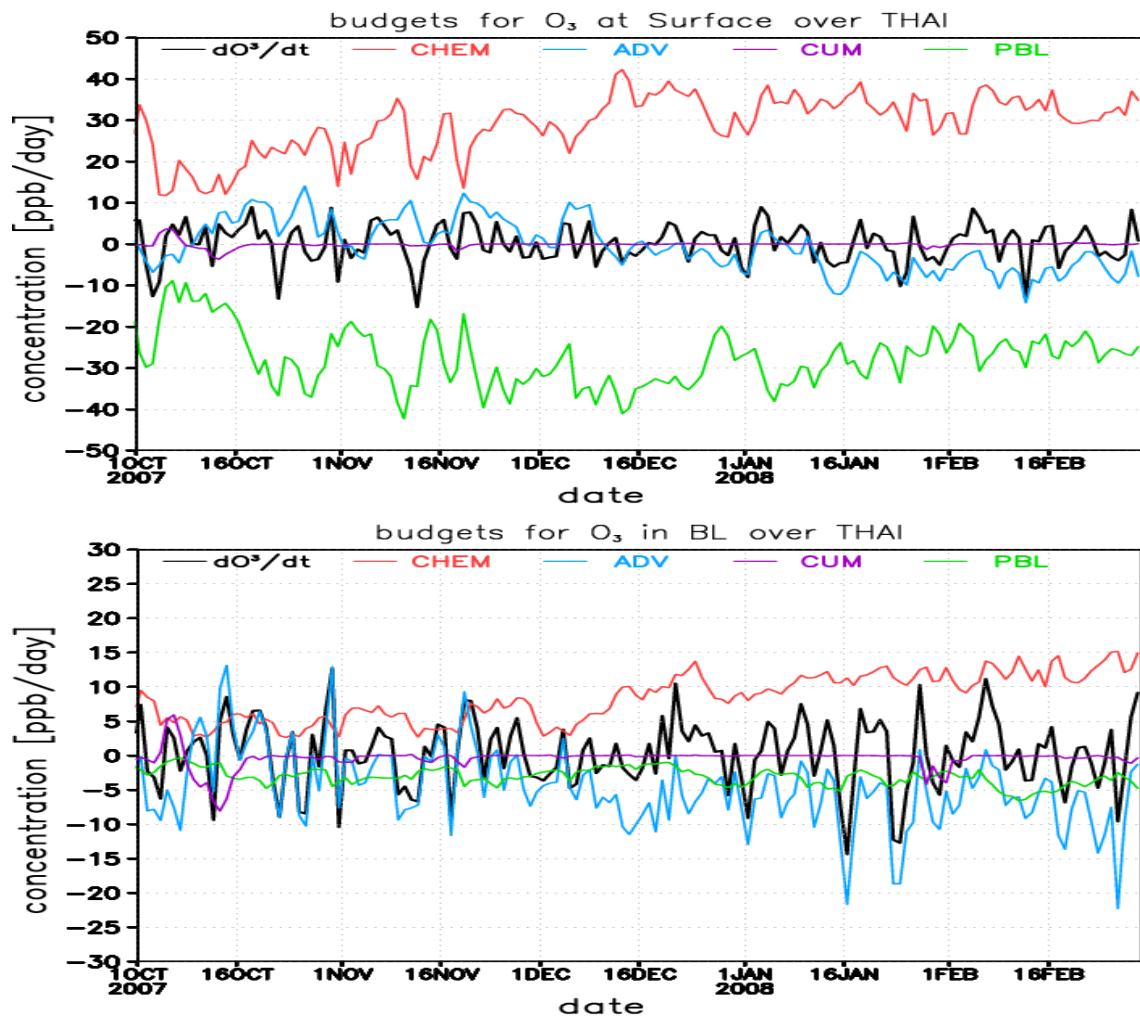


図 4.3 オゾン濃度の時間変化とその収支 (ppb/day)

赤：化学反応過程 (CHEM) 青：移流過程 (ADV)

紫：積雲対流過程 (CUM) 緑：境界層乱流過程 (PBL)

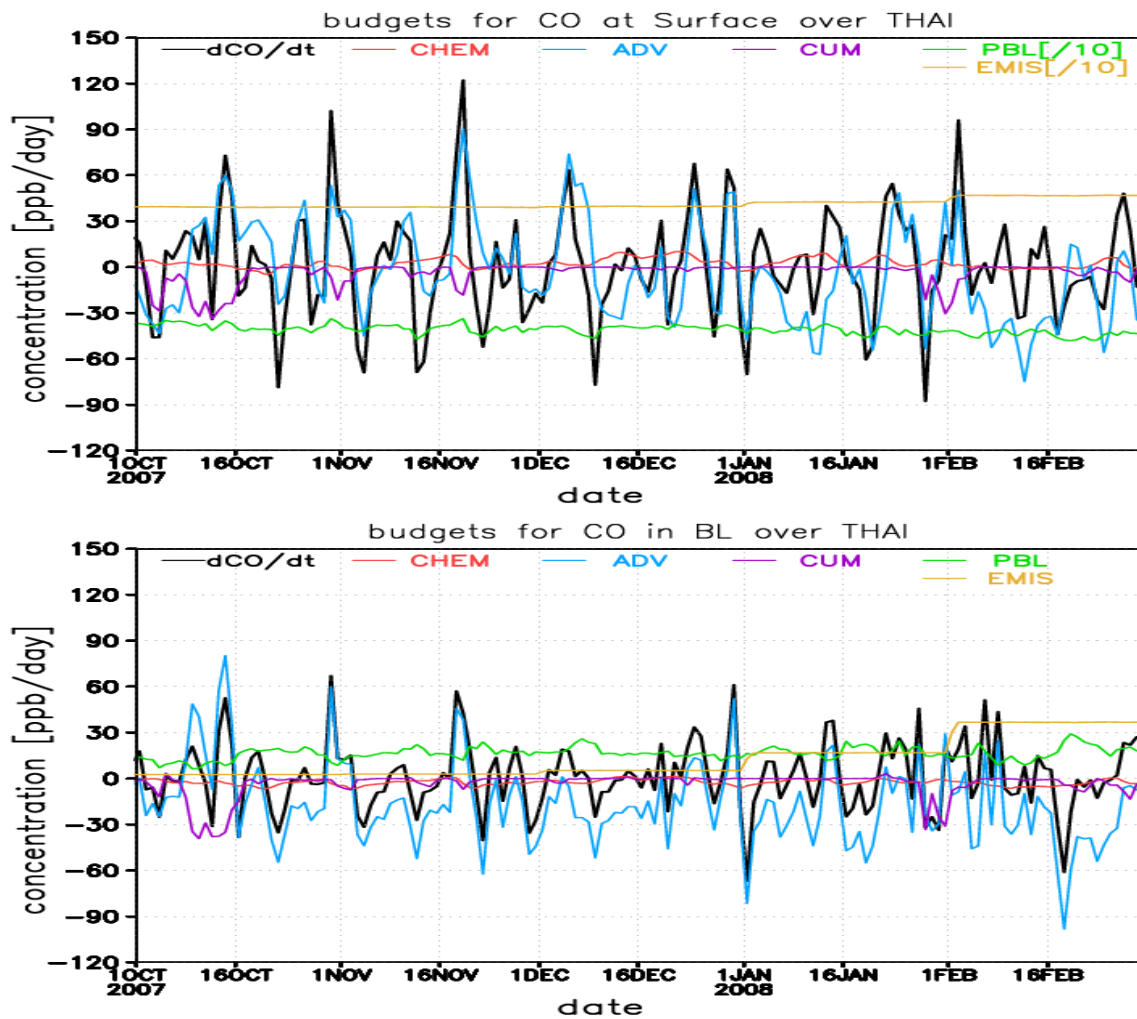


図 4.4 CO 濃度の時間変化とその収支 (ppb/day)

赤：化学反応過程 (CHEM) 青：移流過程 (ADV) 紫：積雲対流過程 (CUM)  
 緑：境界層乱流過程 (PBL) 黄：エミッション (EMIS)



### 4.3 CO 輸送の特徴

前節での解析結果から、移流過程によって地表、境界層ともに CO 濃度が増加していることがわかった。そこで本節では、どのような輸送状況によって CO 濃度が THAI で増加するかを検討した。まず、地表での移流過程による増加が+50ppb/day を超えた日を抽出した。上記を満たす日は 10/14、29、11/19、12/5、24、29、1/23、2/2 の合計 8 日間であった。この 8 日分の平均 CO 濃度、及び 8 日間の 2 日前、1 日前、1 日後、2 日後のそれぞれ 8 日分の平均 CO 濃度、風系を求め、それを全期間での平均 CO 濃度、風系と比較することで、CO 輸送の特徴を調べた。図 4.5 に全期間平均 CO 濃度、風系と、抽出した日前後 2 日間のそれぞれの平均 CO 濃度、風系との差を示す。

移流増加卓越日 2 日前には中国北部から中国南部にかけて顕著に CO 濃度が高くなっており、特に中国南部では一様な風がほとんどなく、CO が蓄積されている様子が伺える。1 日前になり、中国大陸上の北側から一様な北東風が吹き始め、中国北部の CO が南方に流され、中国南部ではさらに CO 濃度が高くなっている。移流増加卓越日当日に中国南部から南シナ海にかけて一様な北東風となり、中国南部で蓄積された CO がインドシナ半島へと輸送されてきている。このとき、ベトナムから南シナ海の北部一帯にかけての 1000~1500km 幅という広範なスケールで輸送されてきていることがわかった。1 日後にはタイのほとんどが中国からの CO 輸送により濃度が高くなっている。特にタイ東部では平均よりも 70ppb 以上の高濃度となっている。2 日後には 70ppb 以上のより高濃度な範囲がタイ全域へと広がっている。

中国からタイにかけての地表付近の高濃度 CO の輸送については以下のような特徴を持っていることがわかった。まず、中国大陸内で一様な風が吹かない時に高濃度 CO が蓄積される。次第に北から南にかけて北東大陸風が強まっていき、蓄積された CO がベトナムから南シナ海北部にかけての広範囲で南西方向へと輸送され、タイに達する。そして、このサイクルが 4~5 日間で生じているであろうと考えられる。境界層においても地表と同様の検討を行ったところ、輸送される CO 濃度は 20~50ppb 程度低いものの、ほぼ同様の特徴が見られ、地表から境界層全体で CO が輸送されてきていることがわかった。

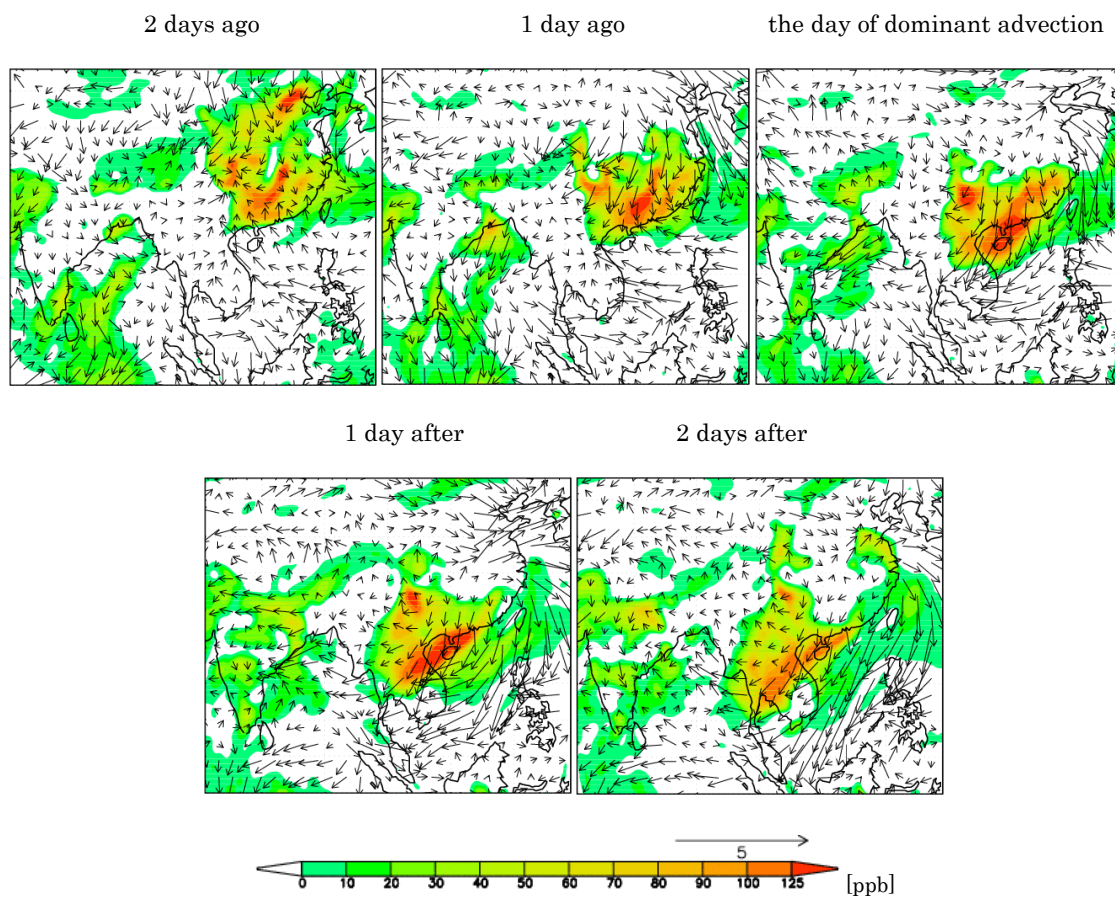


図 4.5 移流過程による CO 増加が卓越した ( $>+50\text{ppb/day}$ ) 日、及び前後 2 日間それぞれの平均と全期間平均との差。シェイドが CO 濃度 (ppb)、ベクトルが風 (m/s) を示す。上段左から下段右にかけて、それぞれ 2 日前、1 日前、移流増加卓越日、1 日後、2 日後の平均と全期間平均との差。

## 5 エミッション感度実験

### 5.1 タイに対するエミッション寄与率

第4章ではタイでの濃度変動の特徴及び中国からのタイへかけての輸送の特徴を確認した。本章では、中国領域やその他の領域からのエミッションがタイに対してどの程度の寄与があるのかを定量的に調べるために感度実験を行うことで確認する。図5.1に示したように東南アジア北部、中国北部、中国南部、インドの各領域における人為起源エミッションをモデル中において全く与えずゼロとした実験（順にNSE、NCH、SCH、IND実験）、またバイオマス燃焼起源エミッションをゼロとした実験（BB実験）をCTLと同様の期間、エミッション以外の条件設定を全て変えずに計算させ、その結果とCTL実験との結果から寄与率を算出した。算出方法は以下の通りである。

$$C_i(x, y, z, t) = \frac{[N_{CTL}(x, y, z, t)] - [N_i(x, y, z, t)]}{[N_{CTL}(x, y, z, t)]} * 100$$

$C_i$  : 実験*i*における寄与率(%)

$[N_{CTL}]$  : CTL実験における変数*N*の濃度(ppb) (ここでは、オゾン、COの濃度)

$[N_i]$  : 実験*i*における変数*N*の濃度(ppb)

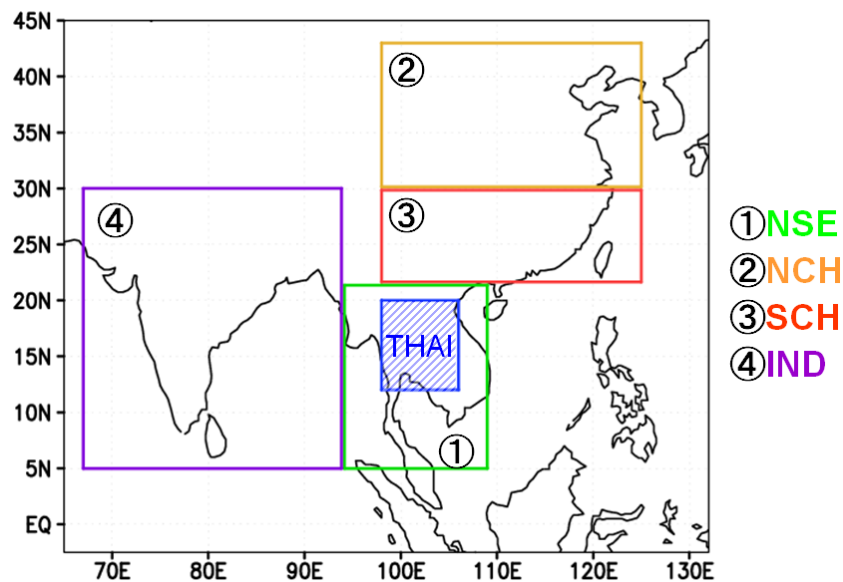


図5.1 エミッション抑制実験で anthropogenic エミッションをゼロとした際の領域区分  
①東南アジア北部 (NSE) ②中国北部 (NCH) ③中国南部 (SCH) ④インド (IND)

図 5.2、5.3 に各実験の計算結果をもとに算出されたオゾン、CO の半月毎の平均寄与率及びその標準偏差を時系列で示す。また、表 5.1 に全期間で平均した寄与率を示す。オゾンに着目すると、10 月後半～11 月後半は SCH の寄与が最も高く、半月平均寄与率が 13～16% である。この時期は NCH の寄与も SCH 同様 NSE の寄与を上回っており、SCH、NCH の合計値 CH の半月平均寄与率は、24～26%と全期間中最大であった。つまり、この季節のタイのオゾン濃度に対して中国の人為起源エミッションがおよそ 1/4 の寄与と大きな影響を示していることがわかった。境界層では、SCH、NCH の寄与が地表とほぼ等しいのに対し、NSE の寄与率は地表での寄与率よりも 5～10%低い。この傾向は特に 10 月上旬～12 月下旬に強くなっており、境界層での値は地表の 1/2 程度となっている。この地表と境界層での寄与率の関係から、地表から境界層全体にかけ中国から人為起源エミッション由来のオゾン、オゾン前駆気体の輸送が強くなっている一方、東南アジア内の人為起源エミッションによる寄与は主に地表で強く、境界層では弱いことがわかった。これは地表での寄与が主に光化学生成によるものであることを示唆しており、第 4 章で得られた結果と整合的である。また、1 月以降、バイオマス燃焼起源エミッションが増加し始めてからも BB の寄与は地表、境界層とも最大 6%ほどと中国、東南アジア内での人為起源エミッションの寄与の方が依然強い。また、NCH は SCH の 7 割ほどの値であり、中国北部の人為起源エミッションからの影響も無視できない。

CO 濃度に着目すると、地表では、ほぼ全期間で NSE の寄与率が最も高い値となっている。しかし、SCH と NCH の合計値 CH と比較すると、10 月後半～11 月後半、1 月後半以降は CH の方が、10%以上寄与率が高いことがわかる。また、1 月以降、BB の平均寄与率が 14～21%を示し、高い寄与となっている。しかし、BB は CH よりは依然として低い。これは、バイオマス燃焼起源エミッションが図 2.1 からわかるようにインドシナ半島内で卓越し、中国での人為起源エミッションと同程度の濃度に達した後も、バイオマス燃焼の効果よりも依然として中国からの輸送効果の寄与が強いことを示している。境界層では、オゾン同様、NSE の寄与率が地表での値よりも明らかに低くなっている。10 月上旬～12 月下旬でその比は 1/2～1/3 と大きく地表の値の方が高くなっており、全体平均値でもほぼ 1/2 である。またオゾン同様 NCH は SCH の 8～9 割と SCH に匹敵するエミッション効果を持っており、中国大陸全域からの影響があることがわかった。

以上をまとめると、ほぼ全期間を通じて、地表、境界層ともに THAI のオゾン、CO に対して CH の寄与率が高く、特に 10 月後半から 11 月後半までは半月平均がそれぞれ 25%、40%であり、東南アジア内での人為起源エミッションよりも中国由来の人為起源エミッションの方が、タイの濃度に対して大きく影響していることがわかった。また、CH の寄与率は地表、境界層とで、ほとんど変化はしなかったが、NSE の寄与率は境界層での値が地表での値よりもおよそ 1/2 であった。これは近傍での輸送や光化学反応は地表付近で卓越する一方、中国でのエミッション由来のオゾン、オゾン前駆気体の輸送が地表から境界層全域で

卓越していることを示唆している。1月後半はCOに対して、BBが15%前後の寄与率を示したが、CHよりも低く、依然として中国での人為起源エミッションによる影響の方が強く、北東大陸風が支配的である季節は、地表、境界層とも中国での人為起源エミッション量に支配されるということが分かった。

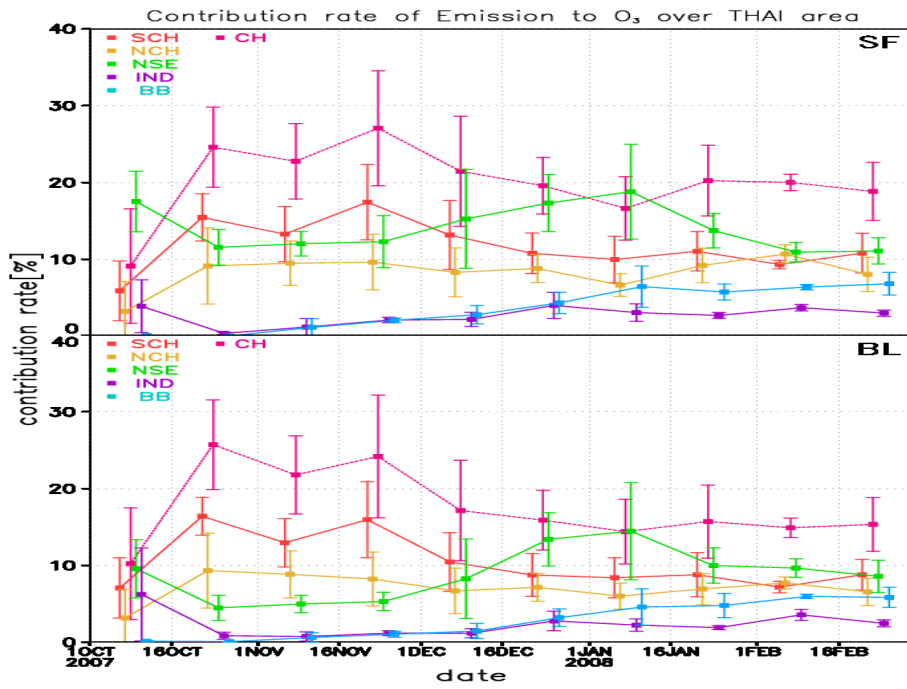


図 5.2 THAI のオゾン濃度に対する各エミッションの寄与率 (%)  
 上段：地表 下段：境界層平均  
 バーは標準偏差を示す。CHはSCHとNCHの合計値。

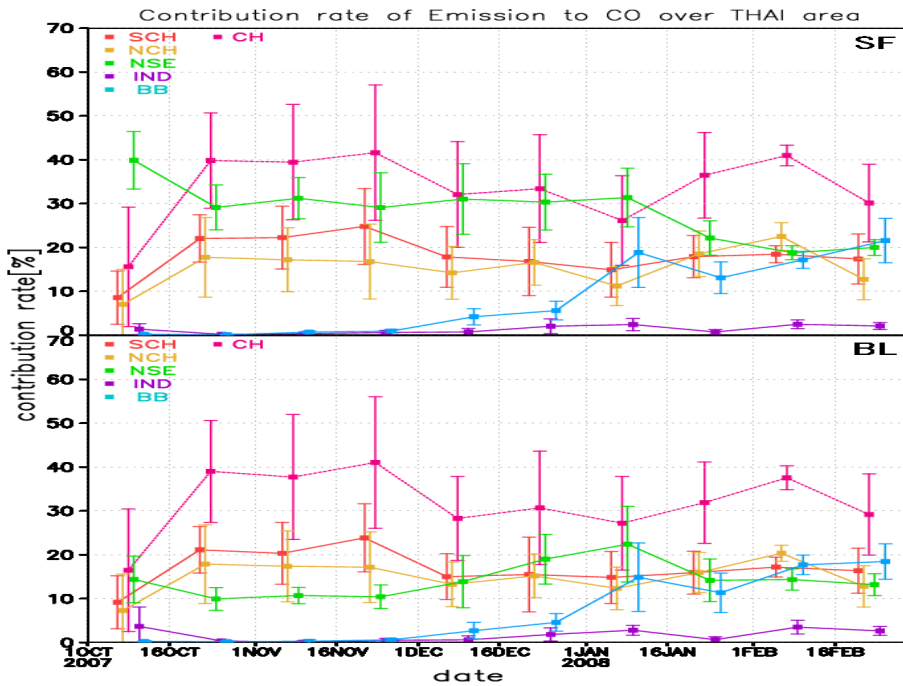


図 5.3 THAI のCO濃度に対する各エミッション寄与率 (%)  
 上段：地表 下段：境界層平均  
 バーは標準偏差を示す。CHはSCHとNCHの合計値。

表 5.1 THAI への各エミッションの全期間平均寄与率[%]

	O <sub>3</sub>		CO	
	地表	境界層	地表	境界層
SCH	11.71	10.47	18.10	16.94
NCH	8.31	7.06	15.47	14.97
(CH)	20.02	17.53	33.57	31.91
NSE	14.05	8.86	28.31	14.25
IND	2.62	2.31	1.32	1.68
BB	3.58	2.77	8.26	7.11

CH は SCH と NCH との合計値を示す。

## 6 まとめと今後の課題

### 6.1 まとめ

本研究では、中国からタイへの汚染気体の越境汚染が定量的にどの程度であるかを評価することをひとつの目的とし、大気化学輸送モデルである WRF/CHEM を用いた数値計算を行い、乾季のタイにおける下部対流圏のオゾン、CO 濃度変動の特徴を調べた。まず、地表エミッションデータを作成し、2007 年 10 月から 2008 年 2 月の北東モンスーンが卓越する期間において、標準 (CTL) 実験を行い、計算結果と観測データとの比較を行った。地表観測点との比較の結果、Phimai において、オゾンは若干、過大評価、CO は観測で急激な濃度増加の際に 100~200ppb 程度の過小評価の傾向が見られたが、濃度の増加、減少のタイミングは概ね再現された。ただし、12 月中旬に観測で見られた南西風の流入がモデルでは見られず、オゾン濃度を 20~30ppb と比較的大きく過小評価してしまった。この南西風はナッジングに使用した客観解析データでも表現されていなかったことが原因であると考えられる。オゾンゾンデとの比較の結果、北東大陸風が支配的となる境界層から下部自由対流圏でのオゾン濃度は定量的によく再現された。CO の衛星観測との比較の結果、地表に置いてモデル計算値が 10~30%程度の過大評価であったが、空間分布の特徴はよく再現された。800hPa 高度においては、タイ、ベンガル付近でモデルが 20%程度の過小評価であったが、空間的な特徴は概ね再現された。

以上から、CTL 実験での計算結果が空間的、時間的に再現性が概ね良いと判断し、この計算結果を用いて以下の解析を行った。タイ周辺のオゾン、濃度変動の特徴を地表、境界層、それぞれについて時間変化及びその収支に着目することで、どの過程が卓越するかを調べた、オゾンは 2007 年 12 月上旬以前とそれ以降で増加に寄与する過程が異なり、前者では化学反応過程及び移流過程、後者では化学反応過程が卓越していた。この特徴は地表、境界層の両者で見られたが、境界層では移流過程の増減が地表よりも大きく影響していた。CO の時間変化と移流過程による時間変化との相関係数は 0.70 と高く、CO 濃度は移流過程によって増加、減少が大きく影響を受けていることがわかった。さらに、地表での CO 移流過程が増加へ卓越した日の空間的な輸送状況を確認した結果、中国大陸内で風が吹かない時に高濃度 CO が蓄積され、次第に北から南にかけて北東大陸風が次第に強まっていき、蓄積された CO がベトナムから南シナ海北部にかけての東西スケール 1000~1500km の広範囲で南西方向へと輸送され、タイに達することがわかった。

さらに、中国やその他の領域からのエミッションがタイに対してどの程度、影響しているかを定量的に明らかにするために、エミッションを抑制した感度実験を行い、CTL 実験の結果と比較することで、各エミッションの寄与率を算出した。その結果、ほぼ全期間を通じて、地表、境界層ともにタイのオゾン、CO に対して中国の人為起源エミッションの寄与率が最も高いことが分かった。特に 10 月後半~11 月後半は半月毎に見積もった平均が



それぞれ約 25%、約 40%の値であり、東南アジア内での人為起源エミッションよりも中国由来のエミッションの方が、タイの濃度に対して大きく影響していた。また、中国での人為起源エミッションの寄与率は地表、境界層とで、ほとんど変化はしなかったが、東南アジア内での人為起源エミッションの寄与率は境界層での値が地表の値のおよそ 1/2 であった。つまり、タイ周辺での輸送や光化学反応は地表付近で卓越する一方で上空への影響が小さいのに対し、中国での人為起源エミッション由来のオゾン、オゾン前駆気体の輸送がタイ周辺での地表から境界層全域で卓越していることがわかった。

## 6.2 今後の課題

本研究では、中国大陸の汚染気体の影響に着目し、乾季前半のみの計算を行った。今後は、乾季後半のバイオマス燃焼がより頻発する時期に焦点を当て、バイオマス燃焼の及ぼす影響を定量的に評価することが期待される。また、長期的な計算を行うことで経年変動の理解及び、季節変動の理解へとつなげていくことが期待される。

また、本研究の結果は中国からの汚染気体の輸送による越境汚染の影響が強いことを示した。今後も中国からの排出が増加してゆけば、さらなる越境汚染の影響が考えられるため、将来におけるシミュレーションを行う必要性も考えられる。

## 謝辞

本研究で使用した Phimai におけるオゾン、CO の観測データは SKYNET で管理されており、茨城大学理学部理学科の北和之准教授よりご提供いただきました。また、Phimai における気象要素は SKYNET で管理されており、千葉大学環境リモートセンシングセンターの高村教授よりご提供いただきました。

Yonagunijima における各種観測データは WDCGG によって管理され、気象庁が所有、提供されたもので、[http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg/jp/wdcgg\\_j.html](http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg/jp/wdcgg_j.html) よりダウンロードして使用させていただきました。

HongKong におけるオゾンゾンデ観測データは WOUDC によって管理され、Hong Kong Observatory が所有、提供されたもので、[http://www.woudc.org/index\\_e.html](http://www.woudc.org/index_e.html) よりダウンロードして使用させていただきました。

Hanoi におけるオゾンゾンデデータはベトナム環境資源省・水文気象局・ハノイ観測所と SOWER/Pacific (Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region/Pacific Mission) プロジェクトとの共同研究により取得されたもので、ハノイ観測所と SOWER プロジェクトの厚意により、独立行政法人海洋研究開発機構の荻野慎也様よりご提供いただきました。

付録に記したタグ付トレーサー実験の結果は独立行政法人国立環境研究所の永島達也様よりご提供いただきました。

皆様に深く感謝申し上げます。有難うございました。

本研究は、東京大学気候システム研究センターの高橋正明教授のご指導の下、行いました。高橋教授には、ご多忙の中、研究に関する様々なご助言をいただくことができました。また、研究とは別に私事では大変ご迷惑をおかけしてしまったと感じております。2年間のご指導に厚く御礼申し上げます。有難うございました。

独立行政法人海洋研究開発機構の滝川雅之様には本研究で使用した WRF/Chem に関して、様々なご助言をいただきました。私の無知な質問に対しても、常に丁寧に対応してくださいました。ここに深く感謝申し上げます。手有難うございました。

研究室の先輩である山下洋介博士、池田恒平さん、井上誠さん、小濱理沙さん、Ohnmar さん、また、2008 年度まで同研究室に在籍されていた廣田渚郎博士には大変お世話になりました。山下洋介博士、池田恒平さんには計算機のことでも多くの手助けをしていただきました。井上誠さんには同じ専攻の先輩ということで入学前から大変お世話になりました。廣田博士、小濱さん、Ohnmar さんには、研究に対するご助言をたくさんいただきました。皆様に深く感謝申し上げます。有難うございました。

気候システム研究センターの同期である奥谷智君、片山匠君、久保田貴久君、外川遼介君、林洋司君、樋口博隆君には大変お世話になりました。皆様のおかげで楽しく有意義な2年間を過ごすことができました。ここに深く感謝申し上げます。有難うございました。

CCSR 及び自然環境学専攻の先生方、先輩、同期、後輩の方々には、中間発表やコースゼミなどにおいて貴重なご意見・ご質問をいただきました。ここに深く感謝申し上げます。有難うございました。高橋研究室の秘書である北嶋さんには手続き等で大変お世話になりました。また、CCSR、自然環境学専攻の事務、スタッフの方々にも常日頃から大変お世話になりました。ここに深く感謝申し上げます。皆様どうも有り難うございました。

最後になりましたが、大学院進学に理解を示し、支えてくださった両親、また研究や日々の生活の支えになっていただきました妻に深く感謝申し上げます。ありがとうございました。

## 参考文献

- Freitas, S. R., K. M. Longo, R. Chatfield, D. Latham, M. A. F. Silva Dias, M. O. Andreae, E. Prins, J. C. Santos, R. Gielow, and J. A. Carvalho Jr.: Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models, *Atmos. Chem. Phys.*, 7., 3385-3398, 2007.
- Grell, G. A., S. Emeis, W.R. Stockwell, T. Schoenemeyer, R. Forkel, J. Michalakes, R. Knoche, and W. Seidl: Application of a multiscale, coupled MM5/chemistry model to the complex terrain of the VOTALP valley campaign, *Atmos. Environ.*, 34, 1435-1453, 2000.
- Grell, G. A., S. E. Peckham, R. Schmitz, S. A. McKeen, G. Frost, W. C. Skamarock, and B. Eder: Fully coupled “online” chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.*, 39, 6957-6975, 2005.
- Guenther, A., Zimmerman, P., Wildermuth, M.: Natural volatile organic compound emission rate estimates for US woodland landscapes, *Atmos. Environ.*, 28, 1197-1210, 1994.
- He, Y., Uno, I., Wang, Z., Pochanart, P., Li, J., and Akimoto, H.: Significant impact of the East Asia monsoon on ozone seasonal behavior in the boundary layer of Eastern China and the west Pacific region, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7543-7555, 2008.
- Kim, Si-Wan, S. A. McKenn, E.-Y. Hsie, M. K. Trainer, G. J. Frost, G. A. Grell, and S. E. Peckham: The Influence of PBL parameterizations on the distributions of chemical species in a mesoscale chemical transport model, *WRF-Chem*, 17th Conference on Biometeorology and Aerobiology, 2009.
- Kobayashi K., Okada M., Nouchi I.: Effects of ozone on dry matter partitioning and yield of Japanese cultivars of rice (*Oryza sativa* L.), *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 53, 109-122, 1995.
- Kondo, Y., R.C. Hudman, K. Nakamura, M. Koike, G. Chen, Y. Miyazaki, N. Takegawa, D. R. Blake, I. J. Simpson, M. Ko, K. Kita, T. Shirai, and S. Kawakami: Mechanisms that influence the formation of high-ozone regions in the boundary layer downwind of the Asian continent in winter and spring, *J. Geophys. Res.*, 113, D15304, doi:10.1029/2007JD008978, 2008.
- Lelieveld, Jos. and Dentener, F. J.: What controls tropospheric ozone?, *J. Geophys. Res.*, vol. 105, p. 3531-3551, 2000.
- Lin M., T. Holloway, T. Oki, D. G. Streets, and A. Richiter: Multi-scale model analysis of boundary layer ozone over East Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3277-3301, 2009.
- Longo, Karla M., and Saulo R. Freitas: Estimation of biomass burning emissions on

- South America using field observations and remote sensing, Proceedings of 8 ICSHMO, Foz do Iguacu, Brazil, INPE, p. 115-119, 2006.
- Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, and T. Hayasaka: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980 – 2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419–4444, 2007.
- Pochanart, P., J. Kreasuwun, P. Sukasem, W. Geeratithadaniyom, M. S. Tabucanon, J. Hirokawa, Y. Kajii, and H. Akimoto: Tropical tropospheric ozone observed in Thailand, *Atmos. Environ.*, 35, 2657– 2668, 2001.
- Pochanart, P., H. Akimoto, Y. Kajii, and P. Sukasem: Carbon monoxide, regional-scale transport, and biomass burning in tropical continental Southeast Asia: Observations in rural Thailand, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 4552, doi:10.1029/2002JD003360, 2003.
- Skamarock, W. C., J. B. Klemp, J. Dudhia, D. O. Gill, D. M. Barker, M. Duda, X.-Y. Huang, W. Wang and J. G. Powers: A Description of the Advanced Research WRF Version 3, NCAR Technical Note, –475+STR, 2008.
- Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto: CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 107(D17), 4339, doi:10.1029/2001JD001113, 2002.
- Sudo, K., M. Takahashi,, H. Akimoto: CHASER: A global chemical model of the troposphere 2. Model results and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 107(D21), 1 4586, doi:10.1029/2001JD001114, 2002.
- Stockwell, W.R., Middleton, P., Chang, J.S., Tang, X.: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, 95, 16 343–16 367, 1990.
- Takigawa, M., K. Sudo, H. Akimoto, K. Kita, N. Takegawa, Y. Kondo, and M. Takahashi: Estimation of the contribution of intercontinental transport during the PEACE campaign by using a global model, *J. Geophys. Res.*, 110, D21313, doi:10.1029/2005JD006226, 2005.
- Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, H. Tanimoto, J. Kurokawa, and H. Akimoto: Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in east Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan?, *Atmos. Environ.*, 40(10), 1856–1868, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.10.067, 2006.

- Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, H. Tanimoto, J. Kurokawa, P. Pochanart, and H. Akimoto:  
Future prediction of surface ozone over east Asia using Models-3 Community  
Multiscale Air Quality Modeling System and Regional Emission Inventory in Asia, *J.  
GeoPhys. Res.*, 113, D08306, doi:10.1029/2007/JD008663, 2008.
- IPCC. IPCC Fourth Assessment Report (AR4): Climate Change 2007. Cambridge  
University Press, 2007.
- van Aardenne, J. A., F. J. Dentener, J. G. J. Olivier, J. A. H. W. Peters and L. N.  
Ganzeveld, The EDGAR 3.2 Fast Track 2000 dataset. [Available online at  
[http://www.mnp.nl/edgar/Images/Description\\_of\\_EDGAR\\_32FT2000\(v8\)\\_tcm32-2222\\_2.pdf](http://www.mnp.nl/edgar/Images/Description_of_EDGAR_32FT2000(v8)_tcm32-2222_2.pdf).]
- 北和之, 米村正一郎, Pochanart Pakpong, タイ農村域における地表オゾン、CO 濃度の変動,  
日本地球惑星科学連合 2009 年大会, 2009.
- ジェイコブ, D.j., 大気化学入門, 東京大学出版会, 278pp., 2002
- MOPPIT Web サイト <http://www.acd.ucar.edu/mopitt/>
- WDCGG Web サイト [http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg/jp/wdcgg\\_j.html](http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg/jp/wdcgg_j.html)
- WOUDC Web サイト [http://www.woudc.org/index\\_e.html](http://www.woudc.org/index_e.html)

## 付録A ナッジングの有用性について

ここでは、2.2.4 で示したナッジングがどの程度の効果を持つのかについて述べる。CTL 実験からナッジングの適用をはずし、その他の設定を変更しない実験を NUGOFF 実験とし、この実験の結果と CTL 実験の結果との再現性の違いを調べた。図 A.1 に 3.1 で行った地表観測点におけるオゾン、CO 濃度の観測データと実験結果の比較を NUGOFF の結果を合わせて示した。さらに、CTL、NUGOFF と観測データとの相関係数を表 A.1 に示す。ここで CTL の値は表 3.1 と同様である。

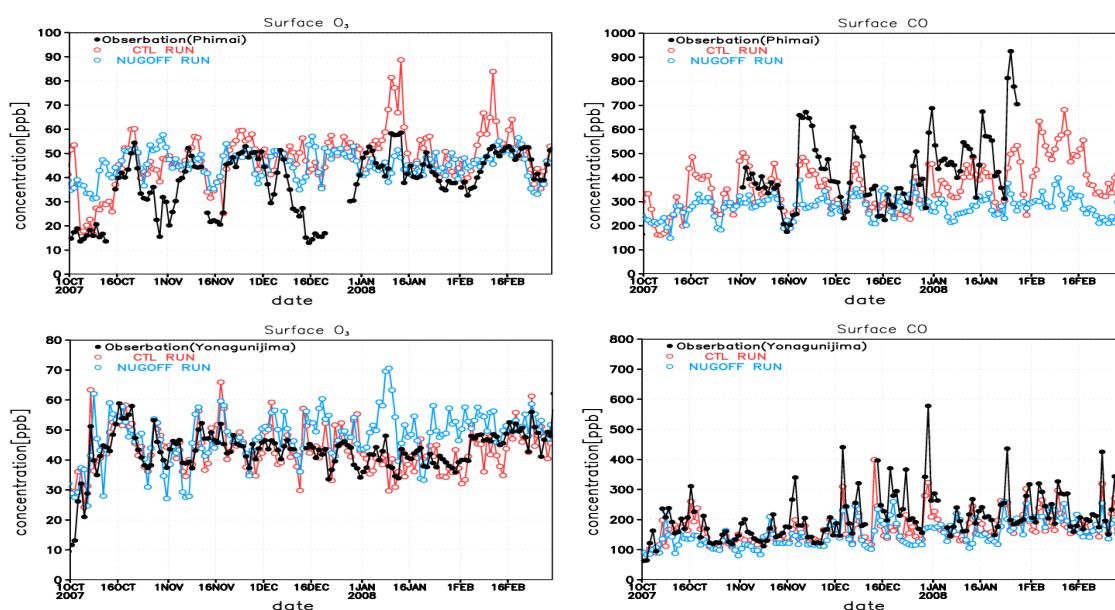


図 A.1 CTL、NUGOFF の再現性の違い  
 上段：Phimai 下段：Yonagunijima  
 左：オゾン濃度 (ppb) 右：CO 濃度 (ppb)

表 A.1 CTL、NUGOFF と観測値との相関係数 (1 時間値)

	CTL		NUGOFF	
	Phimai	Yonagunijima	Phimai	Yonagunijima
オゾン濃度	0.69	0.67	0.32	0.45
CO 濃度	0.79	0.83	0.31	0.59

図 A.1 から NUGOFF でオゾン・CO 濃度の増加、減少のタイミングの再現性が CTL よりも低いことがわかる。また、NUGOFF の結果は Phimai において CO 濃度を大きく過小評価している。また、Yonagunijima においてオゾン濃度を過大評価している日が多く見られる。さらに、表 A.1 から CTL での相関係数の方がかなり高く、ナッジングを適用した場合の方が、再現性がかなり向上している。以上から、ナッジングの適用は必要であると判断した。

## 付録B エミッション感度実験とタグ付トレーサー実験との比較

本研究では、CTL 実験結果と、ある特定の領域におけるエミッションをゼロとした実験の結果とを比較することによって、オゾン、CO のエミッション寄与率を算出した。この実験方法に対して、ソースレセプター実験（タグ付トレーサー実験）という手法がある。これは、ある特定の領域において発生したオゾン、CO にタグを付し、全領域において生成、排出したオゾン、CO に対して、タグ付きのオゾン、CO の割合を算出するという手法である。

本付録では、本研究で行ったエミッション感度実験（以下、EMIS EXP）によって算出したエミッション寄与率とタグ付トレーサー実験（TAG EXP）によって算出された寄与率との比較を行った結果を示す。比較には中国域からタイ域に対するオゾンの寄与率のみを対象とした。TAG EXP の結果は独立行政法人国立環境研究所の永島氏よりご提供いただいたものを用いた。本データは全球化学輸送モデル CHASER の T63 の水平分解能によって計算されたもので、計算期間は 2000～2005 年の 6 年間であり、比較にはこの 6 年間の平均値を使用した。TAG EXP 及び EMIS EXP との設定のまとめを表 B.1 に、中国域として設定した領域を図 B.1 に示す。中国域の設定領域は若干異なっているが、北京、上海、香港などの沿岸域や華北平原といった高排出量の領域はともにカバーしている点は一致している。また、EMIS EXP に関しては人為起源エミッションによる効果のみを示しているが、TAG EXP においては人為起源、バイオマスバーニング起源エミッション、両者によって間接的に光化学生成される効果を示している点に注意が必要である。ただし、図 2.2、図 2.3 より、中国域におけるバイオマスバーニング起源エミッションの排出量は人為起源エミッションの排出量に対して顕著に低くなっているため、ほとんどが人為起源エミッションによる効果を表すと考えられる。

以上の設定によって計算された両実験の比較結果を図 B.2 に示す。寄与率の増減は地表、境界層ともに 10 月～1 月前半までほぼ同様の傾向を示した。しかし、その差は地表で 7-15%、境界層で 2-15%ほどであった。1 月後半以降は EMIS EXP ではほぼ横ばいの寄与率であったが、TAG EXP では寄与率が減少の傾向を示しており、その差は地表で 3-13%、境界層で 3-10%ほどであった。以上のように、地表よりも境界層平均とした場合の方が、一致性は高く、特に 10 月後半～1 月前半においてはよい一致が見られた。

これらの結果は領域モデルと全球モデルの結果との比較となっているため、今後は領域モデルでもタグ付トレーサー実験を行い、領域モデル同士の結果の比較を行う必要がある。



表 B.1 各実験の設定のまとめ

実験		エミッション感度実験 (EMIS EXP)	タグ付トレーサー実験 (TAG EXP)
使用モデル		WRF/Chem (領域)	CHASER (全球)
水平分解能		50kmx50km	T63 (1.875° x1.875°)
エミッション	anthropogenic	REAS	REAS (アジア域のみ)
	biomass burning	GFED v 2	RETRO

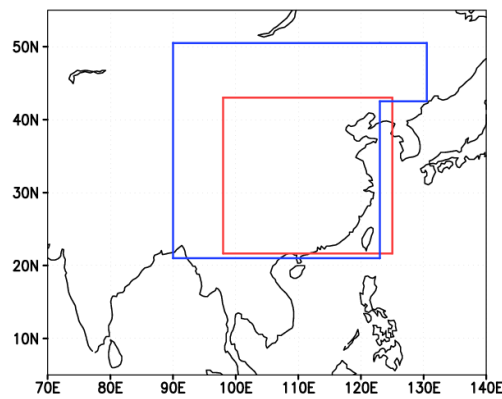


図 B.1 中国設定領域

赤枠：EMIS EXP 青枠：TAG EXP

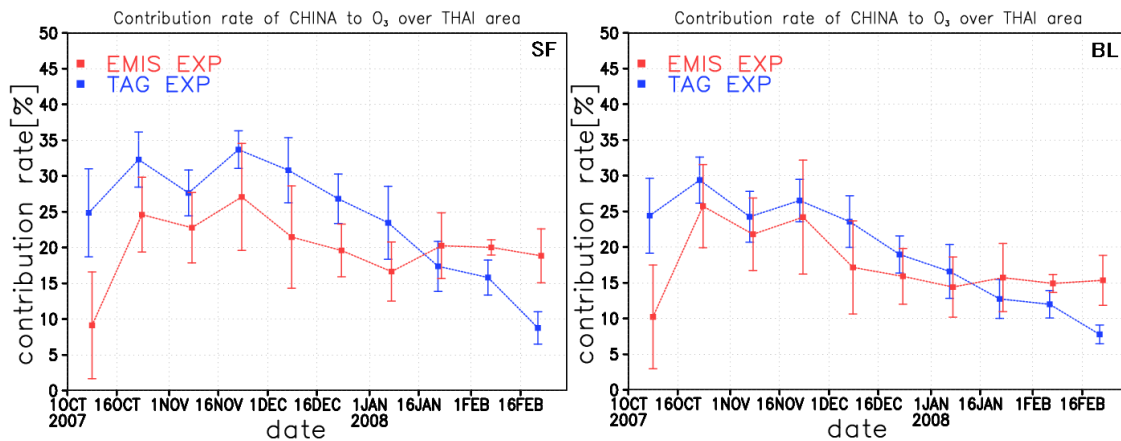


図 B.2 EMIS EXP と TAG EXP との実験結果の比較

左：地表 右：境界層平均

■は半月平均値を示し、バーは標準偏差を示す。